

# HELVETICA PHYSICA ACTA

SOCIETATIS PHYSICAE HELVETICAE  
COMMENTARIA PUBLICA

VOLUMEN XIX

BASILEAE • IN AEDIBUS BIRKHAUSER  
MCMXLVI

HELVETICA  
PHYSICA ACTA  
Schweizerische Physikalische Gesellschaft  
Copyright 1946 by: Société Suisse de Physique  
Società Fisica Svizzera

---

Druck von Emil Birkhäuser & Cie., A.G., Basel

## Zur Theorie des Magnetfeldgenerators für Mikrowellen

von F. Lüdi, Brown Boveri & Cie., Baden.

(1. I. 1946.)

*Inhalt:* Die Fortsetzung früherer Untersuchungen<sup>1)</sup> im folgenden als I zitiert, haben uns zu 4 charakteristischen Beziehungen geführt, welche das Verhalten dieses Generators in allgemeiner Weise bestimmen: 1. Die fokussierenden Kräfte als Ursache für die Raumladungsbildung. 2. Eine geometrische Beziehung zwischen Kathodendurchmesser und Segmentzahl, welche den Wirkungsgrad und die Schwingneigung bestimmt. 3. Die Erklärung und die quantitative Bestimmung des für jeden Generator einzustellenden optimalen Magnetfeldes. 4. Die hierzu gehörende Anodenspannung, bei welcher der Generator arbeitet.

Der vorliegende Aufsatz beschäftigt sich mit der Darlegung der Theorie und mit den experimentellen Belegen dieser Zusammenhänge. Eine Zusammenstellung der Resultate findet sich auf Seite 10 (Fig. 2).

*Einleitung:* Zwei grundlegende Dinge sind für die Erzeugung der Mikrowellen massgebend: das die Eigenfrequenz bestimmende Resonanzgebilde und der darauf abzustimmende Elektronenmechanismus. Als Resonanzgebilde haben wir den in einer früheren Mitteilung<sup>2)</sup> beschriebenen ringförmigen Hohlraumresonator verwendet. Dieser einheitliche Schwingkreis hat den Vorteil, dass die Wellenlänge nur durch den Ringquerschnitt und durch die Segmentkapazität pro cm Umfang bestimmt ist, wodurch die Leistung bei gleicher Wellenlänge mit radial grösserer Bauart gesteigert werden kann. Als Kathode genügt dann nicht mehr eine fadenförmige in axialer Anordnung, sondern ihre radiale Dimension muss der Dimension des Resonators in geeigneter Weise angepasst sein.

Hierfür spielt der Elektronenmechanismus eine ausschlaggebende Rolle. Bei grossen radialen Dimensionen nähert man sich dem ebenen Fall und dieser ist in vorliegender Untersuchung als Vereinfachung des Problems behandelt. Die Schlüsse, die sich daraus auf den zylindrischen Fall mit kleinem Kathodendurchmesser ziehen lassen, sind aber noch weitgehend zuständig und wegleitend. Als wichtigste Fragestellung des Elektronenmechanismus, dessen Gesetzmässigkeiten für jedes Resonanzgebilde gelten, wurde in I die Entstehung der Raumladung durch fokussierende Kräfte behandelt. Diese ist ja grundlegend für die Erzeugung der kürzesten Wellen. Sie wird nicht durch eine Sondervorstellung vorausgesetzt, sondern ihr phasenrichtiges Zustandekommen gerade aus den Elek-







Das Wechselfunctional  $V_1$  kann folgendermassen angesetzt werden:

$$V_1 = A \cdot \sin \frac{2\pi}{A} y \left[ 2 \sin \frac{2\pi}{A} x \cdot \cos \omega t \right]. \quad (1)$$

Damit ist das Feld in jedem Raum- und Zeitpunkt beschrieben; es genügt der Laplace-Gleichung.

$$\Delta V_1 = \frac{\partial^2 V_1}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 V_1}{\partial y^2} = 0.$$

Die Konstante  $A$  ergibt sich aus der Randbedingung  $V_1 = 0$  für  $y = 0$ ,  $V_1 = \gamma V_0$  ( $\gamma$  ein Bruchteil des Gleichpotentials) für  $y = d$  zu

$$A = \frac{\gamma V_0}{2 \sin \frac{2\pi}{A} d}. \quad (2)$$

Die Bewegungsgleichungen in kartesischen Koordinaten lauten dann:

$$\left. \begin{aligned} \ddot{y} &= \frac{e}{m} \frac{V_0}{d} + \frac{e}{m} \frac{\partial V_1}{\partial y} - \omega_0 \dot{x} = \frac{e}{m} \frac{V_0}{d} \\ &\quad + \frac{e}{m} \gamma' \cos \frac{2\pi}{A} y \left[ 2 \sin \frac{2\pi}{A} x \cdot \cos \omega t \right] - \omega_0 \dot{x} \\ \ddot{x} &= \frac{e}{m} \frac{\partial V_1}{\partial x} + \omega_0 \dot{y} \\ &= \frac{e}{m} \gamma' \sin \frac{2\pi}{A} y \left[ 2 \cos \frac{2\pi}{A} x \cdot \cos \omega t \right] + \omega_0 \dot{y} \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

mit:

$$\gamma' = A \frac{2\pi}{A} \quad \omega_0 = \frac{e}{m} \frac{H}{c}. \quad (4)$$

Das Gleichungssystem kann homogenisiert werden durch Einführung der Translation

$$x = x_0 + v t + \xi \quad (5)$$

mit der Wahl

$$v = \frac{e}{m} \frac{V_0}{d \omega_0} = \frac{V_0}{d \cdot H/c}. \quad (6)$$

Dadurch wird das Gleichfeld  $E_0 = \frac{V_0}{d}$  wegtransformiert und man hat im mitbewegten Bezugssystem nur die Rollkreisbewegung zu betrachten. Für diese gilt jetzt:

$$\left. \begin{aligned} \ddot{y} + \omega_0 \dot{\xi} &= \frac{e}{m} \gamma' \cos \frac{2\pi}{A} y \left[ 2 \sin \frac{2\pi}{A} x \cdot \cos \omega t \right] \\ \ddot{\xi} - \omega_0 \dot{y} &= \frac{e}{m} \gamma' \sin \frac{2\pi}{A} y \left[ 2 \cos \frac{2\pi}{A} x \cdot \cos \omega t \right] \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

Die trigonometrische Zerlegung der eckigen Klammer gibt ein mit-

laufendes,  $\sin\left(\frac{2\pi}{A}x - \omega t\right)$  und ein gegenlaufendes,  $\sin\left(\frac{2\pi}{A}x + \omega t\right)$  Drehfeld. Durch Benützung der Beziehung (5) und Einführung der Drehfeldgeschwindigkeit  $v' = \frac{\omega}{2\pi/A}$  wird weiter aus (7)

$$\left. \begin{aligned} \ddot{y} + \omega_0 \dot{\xi} &= \frac{e}{m} \gamma' \mathfrak{C} \cos \frac{2\pi}{A} y \left[ \sin\left(\frac{2\pi}{A}x_0 + \frac{2\pi}{A}\xi + \omega\left(1 + \frac{v}{v'}\right)t\right) \right. \\ &\quad \left. + \sin\left(\frac{2\pi}{A}x_0 + \frac{2\pi}{A}\xi - \omega\left(1 - \frac{v}{v'}\right)t\right) \right] \\ \ddot{\xi} - \omega_0 \dot{y} &= \frac{e}{m} \gamma' \mathfrak{S} \sin \frac{2\pi}{A} y \left[ \cos\left(\frac{2\pi}{A}x_0 + \frac{2\pi}{A}\xi + \omega\left(1 + \frac{v}{v'}\right)t\right) \right. \\ &\quad \left. + \cos\left(\frac{2\pi}{A}x_0 + \frac{2\pi}{A}\xi - \omega\left(1 - \frac{v}{v'}\right)t\right) \right] \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

wobei die rechten Seiten wegen der Kleinheit von  $\gamma'$  die Störkräfte repräsentieren, die das Elektron auf seiner Bahn durch die Segmentzone erfährt. Für nicht zu hohe Frequenzen kann man durch entsprechende Einstellung der Felder  $v = v'$  machen, d.h. Synchronismus von Rollkreisbewegung und Drehfeldbewegung erzwingen. Dieser Fall wurde vornehmlich in I behandelt. Für die realisierbaren Fälle gilt jedoch bei hohen Frequenzen  $v < v'$  und dieser Erweiterung gilt die folgende Betrachtung; sie liefert erst die allgemeinen Resultate und enthält den Synchronismus als Spezialfall. Zur Ausführung der Störungsrechnung setzen wir:

$$\begin{aligned} y &= y_1 + y_2 \\ \xi &= \xi_1 + \xi_2 \end{aligned} \quad (9)$$

wo  $y_1$  und  $\xi_1$  die ungestörte Bewegung ( $\gamma' = 0$ ) ohne Berücksichtigung der Feldverzerrung durch Raumladung im mitbewegten Bezugssystem darstellt:

$$\begin{aligned} y_1 &= \varrho (1 - \cos \omega_0 t) \\ \xi_1 &= -\varrho \sin \omega_0 t. \end{aligned} \quad (10)$$

Man erhält dann die Störungsgleichungen

$$\begin{aligned} \ddot{y}_2 + \omega_0 \dot{\xi}_2 &= \mathfrak{R}_y \\ \ddot{\xi}_2 - \omega_0 \dot{y}_2 &= \mathfrak{R}_x \end{aligned} \quad (11)$$

mit

$$\left. \begin{aligned} \mathfrak{R}_y &= \frac{e}{m} \gamma' \mathfrak{C} \cos \frac{2\pi}{A} \varrho (1 - \cos \omega_0 t) \left[ \sin\left(\frac{2\pi}{A}x_0 - \frac{2\pi}{A}\varrho \sin \omega_0 t\right) \right. \\ &\quad \left. + \omega\left(1 + \frac{v}{v'}\right)t + \sin\left(\frac{2\pi}{A}x_0 - \frac{2\pi}{A}\varrho \sin \omega_0 t - \omega\left(1 - \frac{v}{v'}\right)t\right) \right] \\ \mathfrak{R}_x &= \frac{e}{m} \gamma' \mathfrak{S} \sin \frac{2\pi}{A} \varrho (1 - \cos \omega_0 t) \left[ \cos\left(\frac{2\pi}{A}x_0 - \frac{2\pi}{A}\varrho \sin \omega_0 t\right) \right. \\ &\quad \left. + \omega\left(1 + \frac{v}{v'}\right)t + \cos\left(\frac{2\pi}{A}x_0 - \frac{2\pi}{A}\varrho \sin \omega_0 t - \omega\left(1 - \frac{v}{v'}\right)t\right) \right] \end{aligned} \right\} \quad (12)$$



Dabei ist in die rechte Seite von (8) die ungestörte Bewegung (10) eingesetzt. Das Gleichungssystem (11) liefert die zusätzliche Störbewegung des Rollkreises; und zwar interessiert die mittlere Bewegung. Wenn die Kraft  $\mathfrak{R}_y$  über viele Perioden nicht verschwindet so resultiert je nach der Startphase  $x_0$  eine zusätzliche Links- oder Rechtsbewegung in der  $x$ -Richtung, also die gewünschte Elektronenfokussierung (vgl. den Schluss von § 2). In I ist ausführlich gezeigt, dass diese Elektronenballungen sich gerade in der bremsenden Phase der Tangentialkomponente  $\mathfrak{R}_x$  des Wechselfeldes anordnen und von dieser radial auf die Anode befördert werden. Hierdurch findet die Umwandlung der Gleichstromenergie in Wechselstromenergie statt. Diese Radialbewegung erfolgt bei axialem Magnetfeld; dagegen erfordert der Schwingungstyp der Nullschlitzmagnetfeldröhre eine Schiefstellung des Magnetfeldes, hier erzeugt nicht ein Fokussierungseffekt, sondern ein Aussortierungseffekt die Raumladung.

## § 2. Folgerungen aus den Elektronenbewegungen.

Das Nichtverschwinden der Mittelwerte  $\overline{\mathfrak{R}_y}$ ,  $\overline{\mathfrak{R}_x}$ , welches für die Schwingungserzeugung Haupterfordernis ist, knüpft sich an eine notwendige und an eine hinreichende Bedingung.

1. *Die notwendige Bedingung* für die Phasenfokussierung verlangt: nach  $m$  Rollkreisperioden ( $t = mT_0$ ) müssen die Kräfte wieder gleich sein. Das ist der Fall, wenn:

$$\begin{aligned}\omega \left(1 - \frac{v}{v'}\right) mT_0 &= 2n\pi \\ \omega \left(1 + \frac{v}{v'}\right) mT_0 &= 2n'\pi\end{aligned}\tag{13}$$

daraus entnimmt man

$$\begin{aligned}\omega \left(1 - \frac{v}{v'}\right) &= \frac{n}{m} \omega_0 \\ \omega \left(1 + \frac{v}{v'}\right) &= \frac{n'}{m} \omega_0\end{aligned}\tag{14}$$

und setzt dies in  $\mathfrak{R}_y$  und  $\mathfrak{R}_x$  ein; dann folgt

2. *Die hinreichende Bedingung* für Phasenfokussierung: der Mittelwert der Kräfte über  $m$  Rollkreisperioden

$$\frac{1}{mT_0} \int_0^{mT_0} \mathfrak{R}_x \cdot dt = \overline{\mathfrak{R}_x}$$

darf nicht verschwinden.



Die Integrale lassen sich geschlossen ausführen. Man erhält nach längerer Rechnung\*), wenn die Ausdrücke etwas zusammengefasst sind und die Konstante  $\gamma'$  explizite angeschrieben wird.

$$\begin{aligned} \bar{R}_{yx} = \frac{e}{m} \frac{\pi}{A} \gamma V_0 \left\{ \frac{\sin \frac{2\pi}{A} x_0}{\cos \frac{2\pi}{A} x_0} \right\} \frac{1}{\sin \frac{2\pi}{A} d} & \left[ \frac{1}{2} e^{\frac{2\pi}{A} e} \sum_{\kappa=0}^{\infty} \frac{\left( \frac{2\pi}{A} e \right)^{\kappa}}{\kappa!} \frac{\sin[(\kappa m - n) 2\pi]}{(\kappa m - n) 2\pi} \right. \\ & \pm \frac{1}{2} e^{-\frac{2\pi}{A} e} \frac{\sin 2n\pi}{2n\pi} \pm \frac{1}{2} e^{-\frac{2\pi}{A} e} \sum_{\kappa'=0}^{\infty} \frac{\left( \frac{2\pi}{A} e \right)^{\kappa'}}{\kappa'!} \frac{\sin[(\kappa' m - n') 2\pi]}{(\kappa' m - n') 2\pi} \\ & \left. + \frac{1}{2} e^{\frac{2\pi}{A} e} \frac{\sin 2n'\pi}{2n'\pi} \right]. \end{aligned} \quad (16)$$

Abkürzungsweise sind  $\bar{R}_y$  und  $\bar{R}_x$  zusammengefasst, wobei die oberen Zeichen rechts  $\bar{R}_y$  die unteren  $\bar{R}_x$  zuzuordnen sind. Es gilt nun vor allem den Ausdruck (16) zu diskutieren und womöglich zu vereinfachen.

Zuerst ist zu bemerken, dass sich die Summe in der eckigen Klammer wegen des Faktors  $\frac{\sin x}{x}$  auf je ein Glied für  $\kappa$  und  $\kappa'$  reduziert, welches nur dann verschieden von Null ist, wenn  $\kappa m - n = 0$ ,  $\kappa' m - n' = 0$ , d. h., wenn

$$\frac{n}{m} = \kappa, \quad \frac{n'}{m} = \kappa' \quad (17)$$

ganze Zahlen sind. Dies ist die Erfüllung der hinreichenden Bedingung, welche also besagt, dass auf eine Rollkreisperiode des Elektrons eine ganze Anzahl von Schwingungsperioden des mitlaufenden, bzw. des gegenlaufenden Drehfeldes entfallen müssen.

$\kappa = 0$  bedeutet nach (14) Synchronismus,  $\kappa'$  kann nach der gleichen Beziehung auch in diesem Fall nicht Null werden, so dass das letzte Glied in der eckigen Klammer (16) immer Null ist. Eine Berücksichtigung der tatsächlichen geometrischen Grössen gibt nun eine ziemliche Vereinfachung von  $\bar{R}_{yx}$ ;  $2e$  kann ungefähr gleich  $d$  (vgl. Fig. 1) gesetzt werden, genau genommen

$$2e = \varepsilon d \quad \text{mit} \quad \varepsilon = 1 - \eta,$$

denn in I wurde gezeigt, dass der Wirkungsgrad  $\eta$  durch das Verhältnis  $\frac{d - 2e}{d}$  gegeben ist, indem vom Elektron das zwischen  $d$  und  $2e$  verbleibende Potentialgefälle in Wechselenergie umgewandelt

\*) Auch bei dieser Untersuchung hat Herr KÄCH in unserer Firma sein Können bereitwilligst zur Verfügung gestellt, indem er diese Rechnung durchgeführt hat; ich spreche ihm dafür meinen besten Dank aus.

wird. Für praktisch alle realisierbaren Röhren ist  $\frac{d}{A} \geq 0,16$  (dieser Wert entspricht der zweisegmentigen Anode mit Fadenkathode), so dass

$$e^{-\frac{2\pi}{A}d} = 0,35 \quad \text{gegen} \quad e^{\frac{2\pi}{A}d} = 2,85$$

zu vernachlässigen ist; setzt man daher für

$$\sin \frac{2\pi}{A}d \approx \frac{e^{\frac{2\pi}{A}2e}}{2}$$

so können die Kräfte geschrieben werden:

$$\begin{aligned} \mathfrak{R}_x = \pi \frac{e}{m} \left\{ \frac{\sin \frac{2\pi}{A}x_0}{\cos \frac{2\pi}{A}x_0} \right\} \tilde{V} \left[ \frac{1}{A} e^{-\frac{2\pi}{A}e} \frac{\left(-\frac{2\pi}{A}e\right)^\kappa}{\kappa!} \cdot 1 + e^{-\frac{2\pi}{A}3e} \cdot 1 \right. \\ \left. + e^{-\frac{2\pi}{A}3e} \frac{\left(\frac{2\pi}{A}e\right)^{\kappa'}}{\kappa'!} \cdot 1 \right]. \end{aligned} \quad (18)$$

Es ist  $\gamma V_0 = \tilde{V}$  gleich der Wechselspannungsamplitude gesetzt. Mit obigem ungefähren Wert  $\frac{e}{A} = 0,08$  reduziert sich der Ausdruck noch einmal mit genügender Näherung auf

$$\bar{\mathfrak{R}}_x = \pi \frac{e}{m} \left\{ \frac{\sin \frac{2\pi}{A}x_0}{\cos \frac{2\pi}{A}x_0} \right\} \frac{\tilde{V}}{A} e^{-\frac{2\pi}{A}e} \frac{\left(-\frac{2\pi}{A}e\right)^\kappa}{\kappa!} \quad (I)$$

d. h. für die Grösse der fokussierenden Kräfte kann man das gegenlaufende Drehfeld ( $\kappa'$ ) vernachlässigen, nicht aber für die Phase wie wir bald sehen werden. Für Synchronismus ( $\kappa=0$ ) wurde der Kraftausdruck bereits in I abgeleitet.

Ersetzt man wieder  $2e$  in erster Näherung durch  $d$ , so erkennt man neben der Abhängigkeit von der Startphase  $x_0$  als wesentliches Resultat, dass die fokussierende Kraft nur vom geometrischen Verhältnis  $\frac{d}{A}$  abhängt, dass also die an sich beliebige Segmentzahl und der Kathodendurchmesser nur in diesem Zusammenhang von Bedeutung sind. Die Kraft nimmt exponentiell mit diesem Verhältnis ab und hat ein Maximum bei gegebenem  $\frac{d}{A}$  bei einer bestimmten Schwingungszahl  $\kappa$  pro Rollkreisperiode.

Aus der naheliegenden heuristischen Hypothese, dass der Generator dort am besten arbeitet, wo die Wechselkräfte und damit



die Fokussierung am grössten sind, lassen sich die eigentlichen Betriebsdaten ableiten, welche auf Seite 10, Fig. 2, nebst den zugehörigen Figuren zusammengestellt sind. In die Kraft ist der Näherungswert  $\frac{d}{\Lambda}$  eingesetzt. Die Kurvenschar in Fig. 2 gibt den

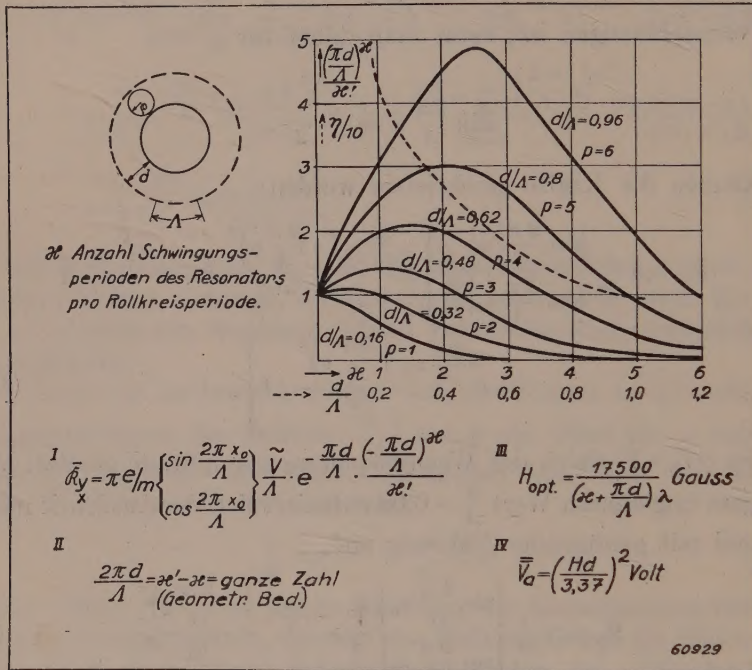


Fig. 2.

optimalen Wert für verschiedene  $\frac{d}{\Lambda}$ , welche den Segmentpaarzahlen  $p=1, 2, 3, \dots$  mit fadenförmiger Kathode entsprechen, gemäss der Beziehung

$$2 \pi r = p \Lambda \quad (19)$$

wobei  $r$  der Anodenradius ist. Die gestrichelte Kurve gibt den mittleren Wirkungsgrad für dieses Verhältnis; er wird kleiner mit grösserem  $\frac{d}{\Lambda}$ , was wegen der geringeren Eindringtiefe der Wechselfelder plausibel erscheint und in I näher ausgeführt ist. Aus (14) erhält man durch Subtraktion

$$0 = 2 \omega \frac{v}{v'} + (x - x') \omega_0. \quad (20)$$

Für die Drehfeldgeschwindigkeit kann wie früher  $v' = \frac{\omega}{2 \pi \Lambda}$  ge-



setzt werden und für die Rollkreisgeschwindigkeit  $v$  folgt nach (6) bei der kritischen Spannung

$$V_0 = \frac{1}{2} \frac{e}{m} \frac{H^2}{c^2} \cdot d^2. \quad (21)$$

bei welcher das Elektron gerade die Anode tangiert

$$v = \frac{1}{2} \frac{e}{m} \frac{H}{c} \cdot d.$$

Der Wert für  $V_0$  kann direkt aus den ungestörten Bewegungsgleichungen für den ebenen Fall durch Nullsetzung der Radialgeschwindigkeit erhalten werden, oder aber aus der HULL'schen<sup>4)</sup> Gleichung

$$V_{ra} = \frac{1}{8} \frac{e}{m} \frac{H^2}{c^2} (r_a)^2 \left(1 - \left(\frac{r_k}{r_a}\right)^2\right)^2 \quad (22)$$

durch Grenzübergang, wenn der Kathodenradius  $r_k$  dem Anodenradius  $r_a$  vergleichbar wird. Für zylindrischen Fall mit fadenförmiger Kathode  $r_k \ll r_a$  erhält man dagegen für die kritische Anodenspannung

$$V_0 = \frac{1}{8} \frac{e}{m} \frac{H^2}{c^2} \cdot d^2. \quad (23)$$

Dass diese im ebenen Fall grösser sein muss, rührt von der fehlenden Zentrifugalkraft  $r \left(\frac{d\Theta}{dt}\right)$  her wie man sich durch Betrachtung der Ausgangsgleichungen überzeugt. Indem man noch (4) benützt erhält man für

$$\frac{v}{v'} = \frac{1}{2} \frac{\omega_0}{\omega} \frac{2\pi}{A} d$$

und schliesslich aus (20)

$$\frac{2\pi}{A} d = \kappa' - \kappa. \quad (II)$$

Diese wichtige geometrische Bedingung (II) besagt mit der Ganzzahligkeitsforderung von  $\kappa$  und  $\kappa'$ , dass der Kathodendurchmesser nur *diskrete* Werte annehmen darf um die Phasenreinheit der Kräfte zu gewährleisten. Sie entspricht ganz derjenigen beim Klystron für den Laufwinkel, welche dort bedeutet, dass die Rückkopplungsbedingung auch phasenmässig erfüllt sein muss.

Durch Addition von (14) erhält man

$$2\omega = (\kappa + \kappa') \omega_0. \quad (24)$$

Drückt man die Gleichung in Wellenlängen aus und setzt für  $\lambda_0$  die bekannte Beziehung für die Nullschlitzmagnetfeldröhre

$$\lambda_0 = \frac{2\pi c}{\omega_0} = \frac{2\pi c}{e/m \cdot H/c} = \frac{K}{H}$$

so bekommt man aus (24)

$$H = \frac{2K}{(\kappa + \kappa')\lambda}.$$

Setzt man hierin für  $\kappa'$  noch den Wert aus (II) ein, so erhält man das *optimale* Magnetfeld für eine vorgegebene Wellenlänge  $\lambda$  (Resonator) und für einen gewünschten Wirkungsgrad  $\left(\frac{d}{A}\right)$

$$H_{\text{opt}} = \frac{K}{\left(\kappa + \frac{\pi d}{A}\right)\lambda} \text{ Gauss.} \quad (\text{III})$$

Die Konstante  $K$  hat im raumladungsfreien Fall den Wert 11500, kann aber mit Raumladung Werte bis 17500 annehmen<sup>5)</sup>. Mit letzterem rechnen wir, da bei axialem Magnetfeld sicher die grösste Raumladung auftritt.

Es ist jetzt ersichtlich, dass beide Gleichungen (14) zur Bestimmung von (II) (III) erforderlich waren; in I wurde das gegenlaufende Drehfeld nicht berücksichtigt, weswegen diese wichtigen Beziehungen nicht erhalten wurden. Das gegenlaufende Drehfeld ist für die *phasenrichtige* Wiederholung der Fokussierungskräfte erforderlich, denn in Wirklichkeit besteht ja nur das räumlich feste Wechselfeld.

Mit dem Magnetfeld und dem Abstand Kathode—Anode ist nun auch die ungefähre Betriebsspannung  $V_0$  gemäss (21) (23) bestimmt.

$$V_0 = \left\{ \begin{array}{l} \left( \frac{Hd}{3,37} \right)^2 \text{ plan} \\ \left( \frac{Hd}{6,74} \right)^2 \text{ zylindrisch} \end{array} \right\} \text{ Volt.} \quad (\text{IV})$$

Damit sind alle erforderlichen Grössen, geometrische, elektrische und magnetische für einen bestimmten Generator festgelegt.

Die Lösung der Bewegungsgleichungen (11) im mitbewegten Bezugssystem ergibt für die gemittelten Kräfte

$$\begin{aligned} \bar{\xi}_2 &= \frac{\bar{R}_x}{\omega_0^2} (1 - \cos \omega_0 t) - \frac{\bar{R}_y}{\omega_0^2} \sin \omega_0 t + \frac{\bar{R}_y}{\omega_0} \cdot t \\ \bar{y}_2 &= \frac{\bar{R}_y}{\omega_0^2} (1 - \cos \omega_0 t) + \frac{\bar{R}_x}{\omega_0^2} \sin \omega_0 t - \frac{\bar{R}_x}{\omega_0} \cdot t. \end{aligned}$$

Für nicht zu grosse Zeiten sind die beiden ersten Glieder rechts klein gegen das dritte und man erhält mit (I) unter Benützung von (4).

$$\begin{aligned} \bar{\xi}_2 &= \frac{\tilde{V}}{H \cdot A} \pi \sin \frac{2\pi x_0}{A} e^{-\frac{\pi d}{A}} \frac{\left(-\frac{\pi d}{A}\right)^\kappa}{\kappa!} \cdot t \\ y_2 &= -\frac{\tilde{V}}{H \cdot A} \pi \cos \frac{2\pi x_0}{A} e^{-\frac{\pi d}{A}} \frac{\left(-\frac{\pi d}{A}\right)^\kappa}{\kappa!} \cdot t. \end{aligned}$$

Der Faktor von  $t$  ist also eine Geschwindigkeit und entspricht ganz der ungestörten Bewegung im Ruhsystem, vgl. (6). Je nach dem Abstand  $x_0$  des Startpunktes vom Nulldurchgang der  $y$ -Komponente des Wechselfeldes erfolgt aber hier die Bewegung in positivem oder negativem Sinn, womit die Bemerkungen nach Gl. (12) noch detailliert sind.

### 3. Die Phasenbedingung bei zylindrischer Anordnung der Segmente.

Durch die Schliessung des Elektronenweges bei der wirklichen zylindrischen Anordnung kommt eine weitere einschränkende Bedingung für die Konstruktion hinzu. Wir betrachten gleich den Fall grosser Kathoden- und Anodenradien; man erhält dann eine besonders durchsichtige Form der Phasenbedingungen. (II) kann unter Berücksichtigung des Wirkungsgrades geschrieben werden

$$\varepsilon d \cdot \pi = \frac{A}{2} (\kappa' - \kappa) \quad (25)$$

und bedeutet anschaulich, dass die Abwicklung des Rollkreises (gleich Zykloldenlänge) einem ganzen Vielfachen der halben räumlichen Wechselfeldperiode (ungefähr gleich der Segmentbreite) sein muss, oder anders ausgedrückt: wenn der Elektronenstart auf einen Segmentschlitz fällt, muss die Zyklode wieder bei einem Schlitz endigen. Das Elektron trifft dann in der Segmentzone dieselbe Phasenlage des Wechselfeldes, wenn das Magnetfeld nach Gl. 24 so bestimmt wird, dass für  $\kappa' - \kappa = 1, 3, 5 \dots \kappa + \kappa'$  ebenfalls ungerade und für  $\kappa' - \kappa = 2, 4, 6 \dots \kappa + \kappa'$  gerade ist; also z. B. für Synchronismus  $\kappa' - \kappa = 1$ ,  $\omega = \frac{1}{2} \omega_0$ .

Der in sich geschlossene Laufweg verlangt für die Phasengleichheit der Kräfte ausserdem

$$q \varepsilon d \pi = 2 \pi r_a = p A \quad (26)$$

und bedeutet, dass  $q$  ganze Rollkreisbewegungen auf dem Weg um die Kathode untergebracht werden müssen; dann sind auch die Wechselkräfte nach einem Umlauf um die Kathode wieder gleich.

Aus (25) und (26) erhält man durch Division

$$q = \frac{2 p}{\kappa' - \kappa} \quad (27)$$

d. h. für ein gegebenes  $\kappa' - \kappa$  (Wirkungsgrad) muss die Segmentzahl so gewählt werden, dass das Verhältnis  $\frac{2 p}{\kappa' - \kappa}$  wieder eine ganze Zahl ist. Es können also bei gegebener Segmentzahl nicht alle ganzzahligen Werte  $\kappa' - \kappa$  durch Vergrösserung des Kathodendurch-



messers durchlaufen werden, sondern nur solche, die (27) erfüllt lassen; dies bedingt aber grössere Änderungen des Magnetfeldes nach (III) beim Übergang zu grösseren Wirkungsgraden; für  $\kappa' - \kappa = 2$  resp. 1 (grosse Wirkungsgrade) ist die Bedingung (27) eo ipso mit (25) erfüllt.

Im zylindrischen Fall mit dünner Kathode erfordert die Angabe der Vorwärtsbewegung des Rollkreises genaueres Eingehen auf die hierfür massgebenden Grössen<sup>4)</sup>, so dass statt (27) eine andere quantitative Beziehung gilt.

#### § 4. Experimente.

Zur Prüfung der Theorie wurden verschiedene Experimente ausgeführt. Um die Abhängigkeit der Leistung und des Wirkungsgrades vom Kathodendurchmesser, oder was dasselbe ist vom Verhältnis  $d/A$  zu untersuchen wurden nacheinander verschiedene Resonatoren mit verschiedenen Segmentzahlen, aber für ungefähr dieselbe Eigenwelle (ca. 12 cm) gebaut und ihre Schwingdaten auf dem Pumpstand mit zunehmendem Kathodendurchmesser untersucht.

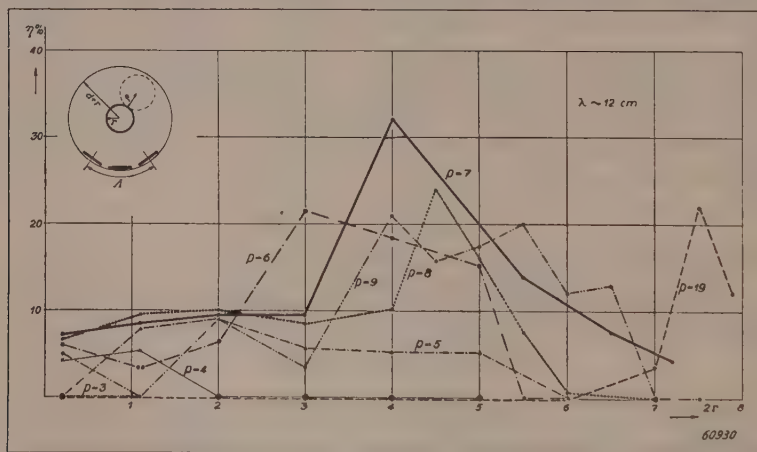


Fig. 3.

Der Anodendurchmesser, auf welchem die Segmente angeordnet sind, war bei allen Resonatoren gleich. Die Fig. 3 zeigt den gemessenen Wirkungsgrad in Abhängigkeit vom Kathodendurchmesser. Die zu einem Resonator bestimmter Segmentpaarzahl gehörigen Messwerte sind durch einen Kurvenzug verbunden.

Es ist nun vor allem ersichtlich, dass die starken Schwankungen des Wirkungsgrades ganz der geometrischen Forderung (II) für diskreten Kathodendurchmesser entsprechen und dass im Mittel der

Wirkungsgrad mit grösserem Kathodenradius zunächst zunimmt und nur von  $\frac{d}{A}$  abhängt (man vergleiche z. B.  $p=6$  und  $p=19$ ).

Die Abnahme des Wirkungsgrades nach einem gewissen Maximum ist mir noch nicht ganz erklärlich, sie hängt möglicherweise mit den zu kleinen Magnetfeldern und Spannungen zusammen, die wir zur Verfügung hatten; denn diese müssen nach (III) und (IV) für kleineres  $\frac{d}{A}$  immer grösser werden; solche Ausführungsformen würden sich für Hochtaströhren eignen, bei welchem die Dauerbelastung bei hohen Betriebsdaten umgangen wird. Die hier nicht tabellierten Magnetfelder und Anodenspannungen nehmen auch ganz gesetzmässig von kleinen Kathodendurchmessern auf grössere zu, wie die Theorie verlangt.

Es war interessant festzustellen, dass bei richtig gewählten Kathodendurchmessern die Rückheizung ein Minimum war, was auch ganz verständlich ist, weil bei guter Phasenabstimmung des Elektronenmechanismus am wenigsten falschphasige Elektronen erzeugt werden, d. h. solche, die aus dem Wechselfeld Energie aufnehmen und auf die Kathode statt auf die Anode laufen; ganz fallen diese Elektronen nie weg, denn die Fokussierung entsteht ja durch Verzögerung und Beschleunigung. Bei solchen Röhren ist die Schwingstabilität aus dem gleichen Grund am grössten; man beobachtet keine Reisserscheinungen.

Ferner sollte ein und derselbe Generator nach (III) verschiedene diskrete Schwingbereiche aufweisen, denn  $\kappa$  und damit  $H$  braucht nicht gerade dem optimalen Wert zu entsprechen. So wurden z. B. deutlich die Schwingbereiche einer Röhre bei ca. 500 und ca. 1000 Volt festgestellt; auch diese Feststellung ist in Übereinstimmung mit derjenigen beim Klystron wo sich die diskreten Schwingbereiche aus der Phasenbedingung ergeben.

Zur quantitativen Prüfung der Theorie haben wir Wirkungsgrad, Magnetfeld und Wellenlänge nebst der Anodenspannung möglichst genau bestimmt und das Magnetfeld nach der genaueren Gleichung

$$H = \frac{17\,500}{\left(\kappa + \frac{\pi \varepsilon d}{A}\right) \lambda}$$

ausgerechnet; in (II) ist statt  $d \varepsilon d$  zu setzen. Für ein ausgeführtes Beispiel war:

$$\frac{d}{A} = 0,7 \quad \eta = 60\% \quad \lambda = 15 \text{ cm} \quad H_{\text{pot}} = 640 \text{ Gauss} \\ V_0 = 1000 \text{ Volt.}$$

Der gute Wirkungsgrad wurde durch genauere Anpassung des Kathodendurchmessers erreicht, und mit angepasster Glühlampe durch Vergleichsmessung mit Selenzelle und Gleichstrom bestimmt. Die entnommene Leistung betrug ca. 40 Watt Dauerstrich. Damit wird nun:

$$\frac{\varepsilon d}{A} = 0,28$$

wozu nach der Kurvenschar der Fig. 2 ein Wert von  $\kappa=1$  zugeordnet wird, so dass sich für das optimale Magnetfeld

$$H_{\text{opt}} = \frac{17\,500}{(1+0,88)15} = 620 \text{ Gauss}$$

ergibt; hierzu gehört nach (IV) die Anodenspannung 4100 bzw. 1000 Volt. Der zylindrische Fall ist also praktisch bei diesem Beispiel noch erfüllt.

Es wurde noch ein weiteres Experiment zur Prüfung der Vorstellung über den Elektronenmechanismus gemacht. Ein Resonator  $R$  mit 50 Segmenten  $S$  und grossem Innendurchmesser wurde mit einer exzentrisch angeordneten Kathode  $K$  und Leitzylinder  $L$  ausgerüstet, wodurch der ebene Fall mit homogenem elektrischen Feld

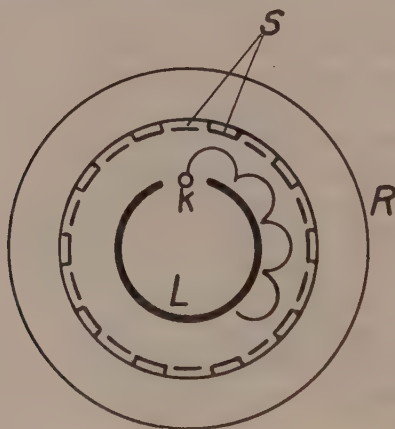


Fig. 4.

zwischen „Kathode“ und Anode praktisch realisiert ist, Fig. 4. Statt der räumlichen Phasenfokussierung der einzelnen Startpunkte haben wir eine zeitliche Phasenfokussierung der am selben Ort startenden Elektronen zu betrachten, was nach I wegen der Drehfelder auf dasselbe herauskommt. Man hat damit eine weitgehende Ähnlichkeit zum Klystron, wo der Elektronenstart an einer bestimmten Raumstelle erfolgt, nur dass hier der Laufweg in sich geschlossen



ist, und die Wechselwirkung mit den Wechselfeldern beliebig oft wiederholt wird. Das erkennt man daran, dass der Resonator bei genügender Belastung am ganzen Umfang gleichmässig glüht, dass also Elektronen die Anode an jeder beliebigen Stelle treffen. Wirkungsgrad und Hochfrequenzenergie halten sich in den früher angegebenen Grenzen und sind durch das Verhältnis  $\frac{d}{\lambda}$  bestimmt.

Unter Vielschlitzmagnetfeldröhre sind auch 2 und 4 Schlitzanoden einbegriffen. Wesentlich ist die Existenz eines Schlitzfeldes mit tangentialer und radialer Komponente. Die Röhren kleiner Schlitzzahl unterscheiden sich von denjenigen grosser Schlitzzahl nicht prinzipiell, sondern hauptsächlich dadurch, dass die Theorie hierfür  $\kappa = 0$ , d. h. Synchronismus zwischen Drehfeld- und Rollkreisbewegung und damit relativ grosse Magnetfelder und Spannungen verlangt. Für kurze Wellen wird man wegen (III) mit einem kleineren Wirkungsgrad (grösseres  $\frac{d}{\lambda}$ ) vorliebnehmen (denn gleicher Wirkungsgrad für eine 5-cm-Welle wie für eine 15-cm-Welle würde bei gleicher Segmentbreite nach (III) und (IV) das 3-fache Magnetfeld resp. die 9-fache Anodenspannung, also ca. 2000 Gauss und 9000 Volt verlangen.) Am Beispiel einer 5-cm-Welle für die der Resonator nach dem gleichen Prinzip wie für 12, 15, 20 cm gebaut war, wurde auch diese Forderung der Theorie verifiziert. Das Magnetfeld beträgt nur 500 Gauss die Anodenspannung 1300 Volt, der Wirkungsgrad ist viel kleiner. Der Kathodendurchmesser war auch hier auf diskrete Werte beschränkt. Abschliessend kann man also sagen, dass die vorstehend entwickelte Theorie alle Wesenszüge der Vielschlitzmagnetfeldröhre wiedergibt, und dass sich sogar die wichtigsten Daten einigermaßen zutreffend vorausberechnen lassen.

### Nachtrag.

Wir haben bis jetzt immer eine am Anodenumfang gleichmässige Segmentverteilung betrachtet. Der Vollständigkeit halber werde jetzt noch der Fall einer ungleichmässigen Verteilung behandelt. Und zwar a) nur ein Schlitz am ganzen Umfang Fig. 5a.

b) Zwei benachbarte Segmente, die über einen Schwingkreis miteinander verbunden sind, während der restliche Umfang durch einen neutralen Zylindersektor ergänzt sei. Fig. 5b.

Bei a) ist die Wellenlänge durch den Umfang des Zylinders bestimmt und entsprechend den konstruktiven Dimensionen für extrem kurze Wellen geeignet.

Bei b) ist sie nur durch den Schwingkreis, z. B. eine Lecherleitung zwischen den Segmenten festgelegt.

Eine solche Konstruktion hat gegenüber vielsegmentigen Anoden, wo je zwei benachbarte Segmente durch einen Schwingkreis verbunden sind, den grossen Vorteil eines einzigen frequenzbestimmenden Gebildes, wogegen die vielen aneinandergereihten einzelnen Schwingkreise genau aufeinander abgestimmt sein müssen, damit die richtige Phase für den Elektronenmechanismus erhalten bleibt; dies erfordert eine äusserste Präzision in der Herstellung der Röhre. Eigene Versuche in dieser Richtung haben uns von diesem

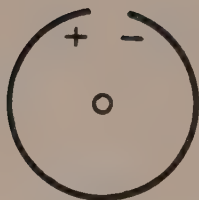


Fig. 5a.

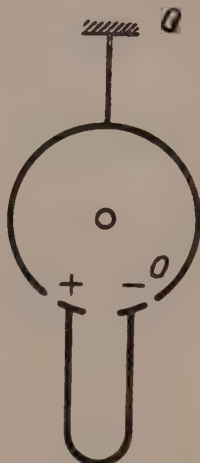


Fig. 5b.

Umstand zur Genüge überzeugt. Hingegen ist zu bemerken, dass der Resonator nach Fig. 4 mit vielen Segmentpaaren frei von diesem Nachteil ist, da ein organisch einheitliches Resonanzgebilde frequenzbestimmend ist.

Für die rechnerische Durchführung ist nun der entsprechende Potentialansatz für das Wechselfeld wesentlich. Wir machen auch hier die Annahme, dass es klein gegen das radiale Gleichfeld sei (denn der Wirkungsgrad wird ja dadurch wie vorher dargelegt, nicht wesentlich beeinflusst) und können somit Störungsrechnung treiben. Der Potentialansatz ist

$$\begin{aligned}
 \text{a) } V_1 &= \frac{\tilde{V}}{\pi} \left( \frac{\pi}{A} \frac{xy}{d} + \sum_{l=1}^{\infty} \frac{\sin l \frac{2\pi}{A} y}{\sin l \frac{2\pi}{A} d} \frac{1}{l} \sin l \frac{2\pi}{A} x \right) \cos \omega t \\
 \text{b) } V_1 &= \frac{2\tilde{V}}{\pi} \left( \sum_{l=p}^{\infty} \frac{\sin l \frac{2\pi}{A} y}{\sin l \frac{2\pi}{A} d} \frac{1}{l} \sin l \frac{2\pi}{A} x \right) \cos \omega t.
 \end{aligned} \tag{28}$$

Beide Ansätze genügen der LAPLACE-Gleichung und erfüllen die Randbedingungen wie der Ansatz (1).

Man kommt auf diese Ausdrücke durch Fourierentwicklung des räumlichen Feldverlaufes für  $y=d$ , wenn man sich die zylindrische Anordnung wieder auf die Ebene abgewickelt denkt ( $V_1 = \gamma V_0 = \tilde{V}$ )

$$\frac{\partial \tilde{V}}{\partial x} = a_0 + \sum_{l=1}^{\infty} a_l \cos l \frac{2\pi}{A} x + \sum_{l=1}^{\infty} b_l \sin l \frac{2\pi}{A} x. \quad (29)$$

$A$  ist die räumliche Periode des Feldverlaufes also gleich dem Anodenumfang. Die Fourierkoeffizientenbestimmung ergibt für a)

$$\begin{aligned} a_0 &= \frac{\partial \tilde{V}}{\partial x} = \frac{\tilde{V}}{A} = \frac{2\pi}{A} \frac{\tilde{V}}{2\pi} \\ a_l &= \frac{2\pi}{A} \frac{1}{\pi} \int_0^A \frac{\partial \tilde{V}}{\partial x} \cos l \frac{2\pi}{A} x dx = \frac{2\pi}{A} \frac{\tilde{V}}{\pi} \\ b_l &= 0. \end{aligned}$$

Hierbei ist angenommen, dass die Schlitzbreite sehr schmal ist, und damit das Feld als  $\delta$ -Funktion betrachtet werden kann deren Integral an der Stelle  $x=0$  gerade den Potentialsprung  $\tilde{V}$  ergibt. Dies in (29) eingesetzt und integriert ergibt den Wert (28a) für  $y=d$ .

Für b) wird

$$\begin{aligned} a_0 &= \frac{1}{2\pi} \left( \frac{1}{2} \tilde{V} - \tilde{V} + \frac{1}{2} \tilde{V} \right) = 0 \\ a_l &= \frac{2\pi}{A} \frac{1}{\pi} \int_0^A \frac{\partial \tilde{V}}{\partial x} \cos l \frac{2\pi}{A} x dx \begin{cases} = 0 & \text{für } l < p \\ \approx \frac{2\pi}{A} \frac{2}{\pi} \tilde{V} & \text{für } l = p \end{cases} \\ b_l &= 0. \end{aligned}$$

Auch hier ist das Feld wieder als  $\delta$ -Funktion in den Schlitzten gedacht; ihr Integral über  $x$  liefert die Potentialsprünge.  $a_l$  wird Null für kleine  $l$ , da hierfür  $\cos l \frac{2\pi}{A} x$  eine langsam Veränderliche ist und sich die Potentialsprünge wie bei  $a_0$  aufheben. Erst für ein bestimmtes  $l=p$  für welches  $\cos p \frac{2\pi}{A} x$  den Wert von  $+1$  auf  $-1$  von einem Schlitz zum nächsten ändert, erhält man die Summation der Potentialsprünge. Dieser bestimmte  $l$ -Wert bedeutet nichts anderes als den Ersatz der Anode nach Fig. 5b) durch eine  $p$ -segmentpaarige Anode, wobei also  $2p$  die Segmentzahl gleicher Breite wie in Fig. 5b ist, die auf dem Umfang Platz haben. Der Unterschied gegenüber einer wirklichen  $2p$ -segmentigen Anode äussert sich in der kleineren Feldstärke (Fourierkoeffizienten) zwischen den Seg-



menten bei gleichem Wechselepotential. Hier ist  $\Lambda$  der Anodenumfang, während bei der Anode mit  $p$  Segmentpaaren  $\Lambda$  der Abstand von einem Schlitz zum übernächsten ist.

Solange die Schlitzbreite unendlich schmal ist, sind alle Fourierkoeffizienten und damit alle „räumlichen“ Oberwellen gleich stark. Bei endlicher Schlitzbreite (Feldausbildung) nehmen die Amplituden der Oberwellen ab.

Macht man mit den Potentialansätzen (26) dieselbe Rechnung wie in § 1, so bekommt man die gleiche Form der Mittelwerte für die Kräfte  $\bar{R}_y, \bar{R}_x$  wie (I) nur dass an Stelle von  $\Lambda$ ,  $\Lambda/l$  zu setzen und über  $l$  zu summieren ist; bei der Zeitmittlung fällt der Unterschied von a) und b) (durch das Glied  $\frac{1}{2} \frac{xy}{d}$  bedingt) weg. An Stelle von (14) hat man

$$\begin{aligned}\omega \left(1 - l \frac{v}{v'}\right) &= \frac{n}{m} \omega_0 \\ \omega \left(1 + l \frac{v}{v'}\right) &= \frac{n'}{m} \omega_0\end{aligned}\quad (14')$$

$v'/l$  ist die Drehfeldgeschwindigkeit bei  $2l$ -facher Unterteilung der Anode. Aus (14') erhält man durch Subtraktion

$$0 = 2 \omega l \frac{v}{v'} + (n - n') \omega_0.$$

Die Aufteilung von  $l$  in zwei Faktoren  $l = r \cdot s$  gestattet die Interpretation, dass Oberwellen  $(r \cdot \omega)$  des Resonators erregt werden können, sofern entsprechend (II) die Bedingung

$$\frac{2 \pi d}{\Lambda/s} = n' - n$$

erfüllt ist. Die Fourierzerlegung ist eben gleichbedeutend mit der „Ineinanderstellung“ mehrerer Anoden mit verschiedenen Segmentpaarzahlen.

Versuche mit einem System nach Fig. 5b bestätigten dies. Der einfache Drahtbügel erlaubte das Auftreten von Oberwellen. Es wurde ein Wellengemisch festgestellt, in dem einzelne mit grösserer Intensität vertreten waren.

#### Literaturangabe.

<sup>1)</sup> F. LÜDI, zur Theorie der geschlitzten Magnetfeldröhre H. P. A., Vol. XVI, Fasc. Prim., S. 54—82 (1942).

<sup>2)</sup> F. LÜDI, H. P. A., Vol. XVII, Fasc. Sextus, S. 429 (1944).

<sup>3)</sup> F. LÜDI, H. P. A., Vol. XIII, Fasc. Sec., Fussnote Seite 99.

<sup>4)</sup> A. W. HULL, The physical Review XVIII, S. 31 (1921).

<sup>5)</sup> J. J. MÜLLER, Zürcher Diss., 1937, Oscillations électroniques dans le magnétion; la Revue générale de l'Electricité, 25 sept. 1937 et 2 octobre 1937, X, p. 389-406 et 419—434.

# Ultrarotabsorption von Aluminiumoxydschichten

von R. Fichter.

(12. I. 1946.)

*Zusammenfassung.* Das ultrarote Absorptionsspektrum von anodisch erzeugten Oxydschichten auf Reinstaluminium und auf einer damit hergestellten Spiegellegierung „Reflektal“ wurde ausgemessen bis ca.  $12\ \mu$ . Die gefundenen Banden können teilweise als Wasserbanden identifiziert werden. Andere werden als Banden der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molekel gedeutet und diese Deutung durch Modellrechnungen unterstützt. Aus dem Vorhandensein der Bande, die der Deformationsschwingung des Wassers entspricht, kann gefolgert werden, dass das Wasser in der Oxydschicht als  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekeln vorhanden ist und nicht in der Form eines eigentlichen Hydroxyds (an Al gebundene OH-Gruppen). (Schlussfolgerungen s. S. 37.)

## 1. Die Aluminiumoxydschicht.

Bekanntlich ist die Struktur der Oxydschicht auf dem Al noch nicht vollständig abgeklärt, obwohl die Oxydschicht für die chemische Beständigkeit des Metalls entscheidend ist und die anodische Oxydation eine grosse technische Bedeutung hat. Aluminiumoxyd und seine Hydrate, meist Aluminiumhydroxyd genannt, können in verschiedenen Modifikationen auftreten<sup>1)</sup>.

Das *Aluminiumoxyd* (Tonerde,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) kommt hauptsächlich in 2 Formen vor:

1.  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ , die häufigste Form, ist besonders bei hohen Temperaturen beständig (Rhomboedrisches Gitter).
2.  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ , entsteht beim Entwässern von gefällttem Hydroxyd unterhalb  $950^\circ$ . (Kubisches Gitter.)

*Aluminiumhydroxyd* ist in mannigfachen Formen bekannt: In bezug auf den Zustand hat man die kristallisierte Form und das Gel zu unterscheiden. Vom Standpunkt der chemischen Zusammensetzung aus gibt es 2 Hydroxyde: das Monohydrat  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$  und das Trihydrat  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\ \text{H}_2\text{O}$  (oder  $\text{Al}(\text{OH})_3$ ). Das Gel hat einen je nach der Feuchtigkeit in der Umgebung wechselnden Wassergehalt, die Grundverbindung entspricht jedoch meist dem Trihydrat. Auch beim Hydroxyd lassen sich Modifikationen  $\alpha$ ,  $\gamma$  usw. unterscheiden.

<sup>1)</sup> Siehe z. B. GMELINS Handbuch der anorgan. Chemie, Band „Aluminium“, Teil B.

Das *Gel* zeigt eine bedeutend grössere Reaktionsfähigkeit als die kristallisierte Form. Man erhält es gewöhnlich, wenn Aluminiumhydroxyd aus wässerigen Lösungen gefällt wird<sup>1)</sup>, wobei zuerst meist das sog.  $\alpha$ -Ortho-Hydroxyd ( $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$ ) entsteht. Es geht dann mit der Zeit über eine Zwischenform ( $\beta$ -Orthohydroxyd) in  $\gamma$ -Orthohydroxyd über (ebenfalls  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$ ).

Es wurde schon mehrfach festgestellt, dass die anodisch hergestellten *Oxydschichten* auf dem Al keine Röntgenstrahl- oder Elektroneninterferenzen zeigen (oder höchstens in ganz verwaschener Form<sup>2)</sup>). Die Oxydschicht ist also nicht kristallisiert, sondern wir haben einen glasartigen Zustand, also eigentlich das Gel, vor uns. Die verwaschene Form der Ringe wurde von einigen früheren Autoren auf eine besonders hohe Kornfeinheit zurückgeführt. Erst nach Glühung bei  $600^\circ$  erscheinen scharfe Interferenzpunkte, resp. -Ringe. Bei dieser Temperatur entsteht aus dem Gel der Böhmit,  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ , ein kristallisiertes Monohydrat (auch Metahydroxyd genannt). Wir konnten anhand von Löslichkeitsversuchen in Salpetersäure (mit verschiedenen Hydroxyden, Oxyd und „Oxyd“-Schichten) bestätigen, dass die Schicht aus einem Gel bestehen muss, da sie sonst viel weniger gut löslich wäre.

Über den *Wassergehalt* der Oxydschicht finden sich — entsprechend den Eigenschaften eines Gels — verschiedene Angaben. So findet JENNY<sup>3)</sup> 12,5% und OBRIST<sup>2)</sup> 20% Wasser. Dem Metahydroxyd  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$  entsprechen 15,0% und dem Orthohydroxyd  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$  34,7% Wasser. Demnach würde die Zusammensetzung der Oxydschicht der eines Metahydroxyds am nächsten kommen.

Nach HASSE und KEHLER<sup>2)</sup> ist auch die an Luft gewachsene *natürliche Oxydschicht* nicht kristallin. Nach Glühung bei  $450^\circ$  treten jedoch bereits Kristalle von  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  auf. Die Befunde anderer Autoren sind teilweise noch widersprechend. Aus den Kapazitätsmessungen von HERRMANN<sup>2)</sup> muss man schliessen, dass die „luftformierte“ Schicht aus 2 Teilen besteht: aus einem (wahrscheinlich) innenliegenden, dichten Film und einer darüberliegenden, porösen

<sup>1)</sup> Aus Aluminatlösungen, also z. B. beim Bayerprozess in der Tonerde-industrie, fällt jedoch kristallisiertes Aluminium-Trihydrat aus ( $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3 \text{H}_2\text{O}$ ), und zwar sog. Bayerit, der sich nur unwesentlich vom natürlich vorkommenden Hydrargyllit unterscheidet.

<sup>2)</sup> HARRINGTON und NELSON, Am. Inst. Met. Eng., Techn. Publ. 1158 (1940). HASSE und KEHLER, Kolloid-Z., **97**, 27 (1941); OBRIST, Diss. E.T.H., Zürich 1944; HERRMANN, Siemens-Werkstoff Sonderheft, 1940, p. 188; HERRMANN, Kolloid-Z., **102**, 113 (1943); SCHMID und WASSERMANN, Hauszeitschr. VAW, Aluminium **4**, 100 (1932); SCHMITT, Hauszeitschr. VAW, Aluminium **4**, 79 (1932).

<sup>3)</sup> JENNY „Elektrolytische Oxydation des Aluminiums usw.“, 1938, p. 128.

Schicht. Es ist nicht bekannt, inwiefern sich die beiden Schichtbestandteile chemisch oder strukturmässig unterscheiden. Der dichte Film bildet in erster Linie den Korrosionsschutz.

Nach der allgemeinen Anschauung besteht auch die künstliche Oxydschicht aus einer dichten Unterlage (die wohl mit dem einen Teil der natürlichen Schicht identisch ist) und einer porösen, in diesem Fall verhältnismässig dicken Hauptschicht. Während beispielsweise in der Salpetersäure die äussern Hauptpartien der Schicht mit der Zeit vollständig aufgelöst werden, bleibt die innerste, dichte Schicht bestehen und schützt das Metall vor jedem weiteren Angriff durch die Säure. (Anders wäre ja die Beständigkeit von Al in Salpetersäure gar nicht zu erklären). Der innerste, dichte Film besteht demnach aus einer viel weniger löslichen Form. (Vielleicht ist er kristallisiert?)

Da das *Absorptionsspektrum im Ultrarot* Aussagen über die Schwingungsverhältnisse in einer Molekel oder in einem Kristall liefert und da daraus Rückschlüsse auf die Struktur gemacht werden können, untersuchten wir anodisch hergestellte Oxydschichten auf Al im Ultrarot. Zu erwarten sind in erster Linie die bekannten Absorptionsbanden des Wassers. Aus ihrer eventuellen Verschiebung gegenüber der normalen Lage kann man etwas über die Art der Bindung des Wassers aussagen. Weitere starke Banden wären dann eindeutig der Oxyd- (oder Hydroxyd-)Molekel zuzuschreiben.

## 2. Apparatur und Messungen.

Die Messungen konnten wir dank der Zuvorkommenheit des verstorbenen Herrn Prof. M. WEHRLI und der Herren Proff. P. HUBER und E. MIESCHER in der Physikalischen Anstalt der Universität Basel durchführen. Das dort vorhandene Ultrarotspektrometer wurde seinerzeit in der Anstalt selbst gebaut und ist von WEHRLI und FICHTER<sup>1)</sup> beschrieben worden. Es besitzt ein Öffnungsverhältnis von 1:6. Wir hatten 2 Prismen von 60° zur Verfügung: ein Quarz-Cornu-Prisma von 60 mm Höhe und 67 mm Kantenlänge und ein Kochsalzprisma von 55 mm Höhe und 67 mm Kantenlänge. Die übrige Optik besteht aus veraluminisierten Glas spiegeln. Als Strahlenquelle diente ein mit 1 A betriebener Nernststift, wobei der Strom mit Hilfe von 2 Eisenwasserstoffwiderständen konstant gehalten wurde. Um die Strahlung zu messen, benützten wir ein Radiomikrometer, welches sich in einem geschlossenen Gefäss befand. (Strahlungseintritt durch ein NaCl-Fenster.) Das

<sup>1)</sup> M. WEHRLI und R. FICHTER, *Helv. Phys. Acta* **17**, 189 (1941).



ganze Spektrometer samt Nernststift und Radiomikrometer war noch einmal von einem grossen Kasten aus Aluminium mit Beobachtungsfenster und 2 Bedienungsöffnungen umgeben, damit die Luft des Strahlengangs etwas getrocknet werden konnte und einen möglichst gleichmässigen Feuchtigkeitsgrad aufwies. Die relative Luftfeuchtigkeit betrug meist ca. 40% (bei Trocknung mit Kalziumchlorid). Wie die nachher beschriebenen Messungen zeigten, konnte mit dieser Massnahme die unkontrollierbare Wasseraufnahme und -Abgabe der Oxydschichten nicht verhindert werden. Der Kasten bewährte sich aber sonst sehr gut, da die thermischen Verhältnisse auf diese Weise sehr ausgeglichen und ziemlich konstant wurden, so dass die „Nullpunktswanderung“ des Radiomikrometers relativ klein war.

Die Oxydschichten durchstrahlten wir 2mal, indem wir die Ultrarotstrahlen an der polierten Oberfläche des Grundmetalls reflektieren liessen. Mit andern Worten, beobachteten wir die von einem anodisch oxydierten Spiegel reflektierte Strahlung. Diese Spiegel bestanden aus Reinstaluminium „Raffinal“ mit mindestens 99,99% Al oder aus der für Spiegel besonders geeigneten Al-Legierung „Reflektal“ mit 0,5% Mg (Rest Reinstal.), und zwar benützten wir ca. 12 mm dicke polierte Plättchen von  $5 \times 5$  cm. Um bei den Absorptionsmessungen stets einen Vergleich zu haben, wurden die Spiegel mit der zu untersuchenden Oxydschicht alternierend mit einem im Hochvakuum mit Al überzogenen Glasspiegel in den Strahlengang (vor dem Eintrittsspalt) gebracht. Zu diesem Zweck diente ein Schlitten mit 2 Anschlägen. Dieser Schlitten konnte von ausserhalb des Kastens her bedient werden. Die natürliche Oxydschicht auf dem Vergleichsspiegel und den Spiegeln im Apparat wirkte — wie wir feststellten — nicht störend, da ihre Absorption klein ist<sup>1)</sup>.

Der Nullpunkt wurde periodisch, im allgemeinen nach jeder Messung, kontrolliert.

Die Oxydschichten wurden in 20%iger Schwefelsäure bei 20° mit 1 A/dm<sup>2</sup> Stromdichte (nach einem bekannten Verfahren) erzeugt.

Als Beispiel einer Messreihe ist in Fig. 1 das ultrarote Absorptionsspektrum einer 4  $\mu$  dicken, in Wasser ausgekochten Oxydschicht auf Raffinal dargestellt. Die Art, wie die Messpunkte gezeichnet sind, gibt einen Hinweis auf die angegebenen Spaltbreiten

---

<sup>1)</sup> Die natürliche Oxydschicht ist nicht dicker als ca. 0,1  $\mu$ , während eine 4  $\mu$  dicke anodische Oxydschicht eine für die Messungen gut brauchbare Absorption zeigte.

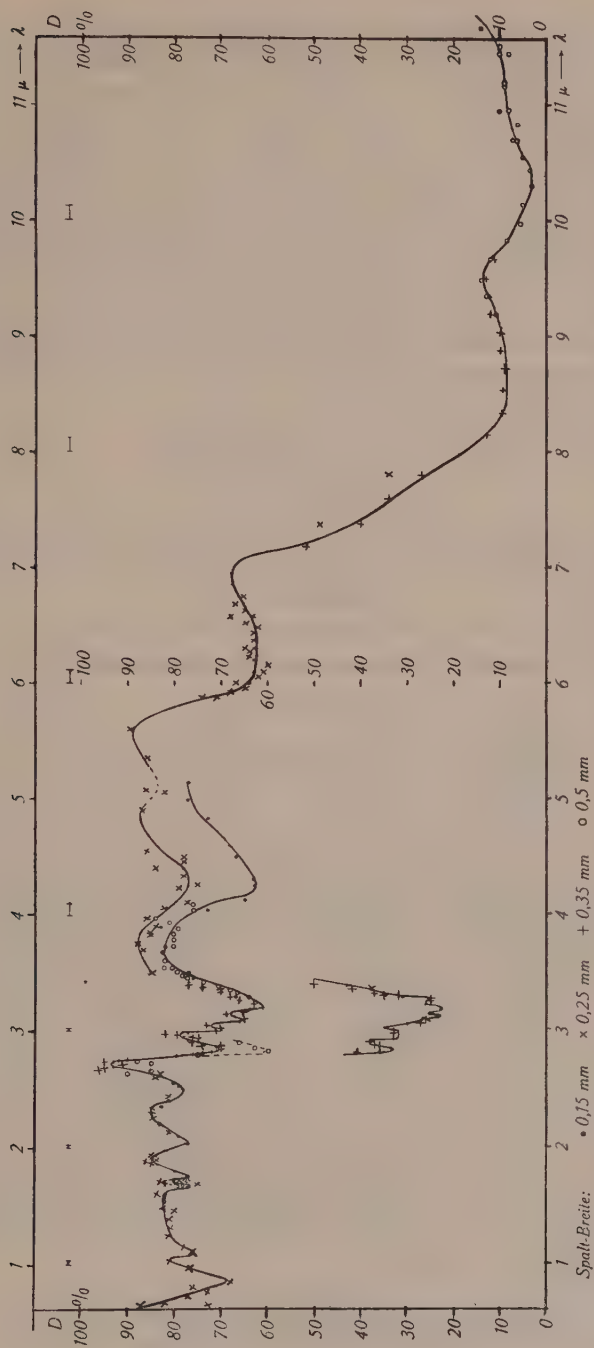


Fig. 1.

Durchlässigkeit  $D$  ein 1 ausgekochten 5  $\mu$  dicken anodisch hergestellten Oxydschicht auf Raffinal  
 (als Funktion der Wellenlänge  $\lambda$  in  $\mu$ ).

in mm. (Siehe Begleittext bei der Figur). Die spektralen Spaltbreiten sind oberhalb der Kurve als horizontale Strecken angegeben.

Man erkennt, dass die Hauptabsorption zwischen ca. 8 und 11  $\mu$  vorhanden ist. Ausserdem findet man die bekannten Absorptionsbanden des Wassers bei 3 und 6  $\mu$  sofort. Der wechselnde Wassergehalt der Oxydschicht äusserte sich bei der vorliegenden Messung z. B. darin, dass eine Kontrollmessung einige Zeit nach der ersten Messreihe bei der 3  $\mu$ -Bande eine stärkere Absorption als ursprünglich ergab (untere Kurve). Entscheidend ist für uns jedoch der Ort der Banden und die Stärke der Absorption spielt erst in zweiter Linie eine Rolle. An der wechselnden Intensität gewisser Banden kann man gerade merken, dass sie vom Wasser in der Oxydschicht herrühren.

### 3. Ergebnisse und Diskussion.

#### a) Zusammenstellung.

Folgende Oxydschichten wurden untersucht (siehe Tab. 1):

Tabelle 1.

Grundmetall <sup>1)</sup>	Schichtdicke	Nachbehandlung
Raffinal	4 $\mu$	keine
Raffinal	4 $\mu$	in Wasser ausgekocht
Reflektal	4 $\mu$	keine
Reflektal	1 $\mu$	in Wasser ausgekocht

Wir konnten so den Einfluss des Grundmetalls, der Schichtdicke und des Kochens in Wasser feststellen. Die Wellenlängen und Wellenzahlen<sup>2)</sup> der gefundenen Absorptionsbanden sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Die ausserdem angegebenen Zahlen über die Intensität der Banden wurden geschätzt. Die stärksten Banden wurden mit 5 bezeichnet und die schwächsten, meist etwas unsichern mit 0. Der Buchstabe *w* bei der Intensitätszahl bedeutet, dass die Intensität wechselte, je nach dem Zeitpunkt der Messung. Solche Banden können von vornherein mit ziemlich grosser Sicherheit als Wasserbanden identifiziert werden, da ein Wechsel des Wassergehaltes (entsprechend Abschnitt 1) in der Schicht wahrscheinlich ist, und da kaum ein anderer Grund für Intensitätswechsel angegeben werden kann.

<sup>1)</sup> Zusammensetzung, resp. Reinheit siehe Abschnitt 2.

<sup>2)</sup> Reziproke Wellenlänge, wenn diese in cm gemessen wird.



Tabelle 2. Gemessene Absorptionsbanden.  
 Ultrarotabsorption von Al-Oxyd

Raff. 4 $\mu$			Raff. ausgekocht 4 $\mu$			Refl. 4 $\mu$			Refl. ausgekocht 1 $\mu$		
Int.	$\lambda$ $\mu$	$n$ $\text{cm}^{-1}$	Int.	$\lambda$ $\mu$	$n$ $\text{cm}^{-1}$	Int.	$\lambda$ $\mu$	$n$ $\text{cm}^{-1}$	Int.	$\lambda$ $\mu$	$n$ $\text{cm}^{-1}$
2	0,90	11100	3	0,85	11760				0	0,85	11760
0	1,10	9090	1	1,10	9090						
1	1,35	7410									
1	1,51	6620	1	1,67	5990						
1	1,74	5750	1	1,74	5750	1	1,58	6330	0	1,67	5990
1	2,03	4930	1	2,03	4930	2	1,73	5780			
			1	2,51	3980	2	1,95	5130			
2	2,84	3520	1	2,51	3980		I				
			3	2,84	3520	1	2,90-2,97	3370-3450	3 <sup>w</sup>	2,92	3420
3 <sup>w</sup>	3,11	3215	0	3,00	3330				0	3,00-3,03	3300-3330
2 <sup>w</sup>	3,19	3135	2	3,11	3215						
0	3,31	3020	4	3,18-3,20	3145-3125	4	3,11-3,19	3135-3215	0	3,19	3135
			10	3,26	3065						
2	4,15	2410	2	4,15	2410						
			0	5,15	1940	2	4,00	2500			
2 <sup>w</sup>	6,35	1575	0	5,15	1940	1	5,3	1885	0	5,05	1980
5	8,55	1170	2	6,25	1600	2	6,35	1575	3	6,25	1600
			5	8,55	1170	5	8,55	1170	4	8,85	1130
				(8,4-8,7)	(1190-1150)		(8,4-8,7)	(1150-1190)			
5	10,45	957	5	10,45	957	5	10,45	957	4	10,95-11,2	895-910
	(10,2-10,6)	(945-980)		(10,2-10,6)	(945-980)		(10,2-10,6)	(945-980)			

$\lambda$  = Wellenlänge in  $\mu$ .  
 $n$  = Wellenzahl in  $\text{cm}^{-1} = 1/\lambda$  (cm).  
 $w$  = wechselnde Intensität, bei anderer Probe schwach.  
 I = in diesem Gebiet wurde nicht gemessen.

Die ausgekochte Schicht auf Reflektal zeigt wegen ihrer geringeren Dicke im allgemeinen weniger intensive Banden. Bei der nicht nachbehandelten Schicht auf Reflektal wurde in gewissen Gebieten nicht gemessen. Dies ist in der Tabelle 2 durch einen vertikalen Strich vermerkt.

Einen auffälligen Einfluss des Grundmetalls zeigt die Bande bei  $3520\text{ cm}^{-1}$  (Raffinal), resp. bei  $3370\text{--}3450\text{ cm}^{-1}$  (Reflektal). Eine Verschiebung zwischen den Banden aller  $4\text{ }\mu$  dicken Schichten und der  $1\text{ }\mu$  dicken Schicht kann man bei den Banden bei  $1170$ , resp.  $1130\text{ cm}^{-1}$  und bei  $960$ , resp.  $900\text{ cm}^{-1}$  feststellen. (Eine Deutung dieser beiden Verschiebungseffekte ist noch nicht gelungen.)

b) *Vergleich mit bekannten Messungen.*

GWYER und PULLEN<sup>1)</sup> haben ähnliche Messungen im Gebiet der  $3\text{ }\mu$ -Bande ( $1\text{--}4,5\text{ }\mu$ ) durchgeführt und haben bei verschieden behandelten Schichten die in Tabelle 3 angegebenen Absorptionsbanden gefunden. Die Proben waren zuerst nach dem Brytalverfahren elektrolytisch poliert.

Tabelle 3.

Schicht	Absorptionsbande	
	$\lambda$ in $\mu$	$n$ in $\text{cm}^{-1}$
in $\text{NaHSO}_4$ oxydiert, in Wasser ausgekocht . . . .	3,0	3330
„ „ oxydiert, bei $200^\circ$ 30 Min. geglüht . .	3,0; 3,4	3330; 2940
„ „ oxydiert, in Öl bei $175^\circ$ , 30 Min. geglüht	3,0; 3,4 <sup>2)</sup>	3330; 2940
„ „ oxydiert, gefärbt . .	3,0 (verstärkt)	3330
„ „ oxydiert, nicht nachbehandelt . . .	3,0; 3,4 (stärker)	3330; 2940 (stärker)

Das Grundmetall war bei GWYER und PULLEN meist Al von Reinheitsgrad 99,8%.

Gegenüber unseren Messungen zeigt sich eine gewisse Verschiebung, da wir bei  $3300\text{ cm}^{-1}$  keine Banden messen konnten, sondern am ehesten die zwischen  $3400$  und  $3500\text{ cm}^{-1}$  gelegenen als Wasserbanden ansprechen möchten (siehe unten), während die Banden bei  $3100$  bis  $3200\text{ cm}^{-1}$  höchstens teilweise auf das Wasser

<sup>1)</sup> Metal Industry (London) **56**, 7 und **33** (1940).

<sup>2)</sup> Weitere schwache Banden zwischen  $1,5$  und  $2,4\text{ }\mu$  und bei  $4,1\text{ }\mu$ .

zurückgeführt werden können. Wahrscheinlich war bei GWYER und PULLEN die Dispersion zu klein, so dass alle Banden der Nachbarschaft in eine Absorption zusammenfielen. (Dies wird auch durch die sehr geringe Punktdichte bei den Messungen der genannten Autoren wahrscheinlich gemacht).

Es liegt nahe, die gemessenen Wellenlängen mit dem bekannten *Ultrarotspektrum des Wassers* zu vergleichen. Die hauptsächlichsten Absorptionsbanden des Wassers sind in Tabelle 4 zusammengestellt<sup>1)</sup>, und zwar finden sich in den ersten 3 Kolonnen die

**Tabelle 4.**  
Absorptionsbanden des Wassers.

Flüssig			Dampf			Deutung
$\lambda$ ( $\mu$ )	$n$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	Intensität	$\lambda$ ( $\mu$ )	$n$ ( $\text{cm}^{-1}$ )	Intensität	
6,1	1640	5	6,266	1596	5 (doppelt)	Deformations- schwingung $\delta$
4,7	2130	3				Assoziation
			3,19	3135	1	2 $\delta$
2,97	3370	5	2,66	3760	4 (doppelt)	Beide Valenz- schwingungen $\nu_1$ und $\nu_2$
1,98	5050	2	1,87	5350	2	$\nu_{1,2} + \delta$
(1,73)	(6220)	0				
1,46	6850	1	1,44	6950	0	
			1,37	7300	2	2 $\nu_{1,2}$
			1,13	8850	1	
0,98	10200	0	0,944	10600	1	

Banden des flüssigen Wassers und in der Kolonne 4, 5 und 6 die Banden des Wasserdampfes. Zur Kolonne 7 „Deutung“ betrachtet man am besten die 3 Normalschwingungen eines Modells der Wassermolekel (siehe Fig. 2). Bei den beiden sogenannten Valenzschwingungen  $\nu_1$  und  $\nu_2$  bewegen sich die H-Atome mehr oder weniger in Richtung der Bindung, während bei der niederer frequenten Deformationsschwingung  $\delta$  hauptsächlich der Winkel der Valenzen geändert wird. Wie die Deutung in der Tabelle 4 zeigt, nimmt man periodisch heute an, dass die durch die beiden Valenzschwingungen verursachten Absorptionen in der 3  $\mu$ -Bande zusammenfallen.

<sup>1)</sup> Siehe z. B. DREISCH, Z. f. Physik, **30**, 200 (1924). SCHÄFER und SCHUBERT, Z. f. Physik, **7**, 297 (1921); TITEICA, Spectres de vibration des molécules polyatomiques; SCHÄFER-MATOSSI, Das ultrarote Spektrum; MATOSSI, Art. in Ergebn. der exakten Naturwiss., Bd. 1938.



Ein Vergleich der Tabellen 2 und 4 zeigt folgendes:

1. Die Banden zwischen  $1575$  und  $1600\text{ cm}^{-1}$  entsprechen der Wasserbande bei  $1596\text{ cm}^{-1}$  (Dampf), bzw.  $1640\text{ cm}^{-1}$  (flüssig), worauf auch die teilweise wechselnde Intensität hinweist. Die Frequenz der gemessenen Banden ist etwas geringer als die der Wasserbanden. Bei den ausgekochten Schichten ist die Frequenz etwas höher als bei den nicht ausgekochten.



Fig. 2.

Die Normalschwingungen der Wassermolekel.

volle Kreise = O-Atome.

$\nu_1, \nu_2$  = Valenzschwingungen.

leere Kreise = H-Atome.

$\delta$  = Deformationsschwingung.

Die Pfeile deuten die Schwingungsrichtung an. Die ausgezogenen Pfeile gehören zusammen und ebenso die punktierten Pfeile.

2. Der Wasserbande bei  $3760\text{ cm}^{-1}$  (Dampf), bzw.  $3370\text{ cm}^{-1}$  (flüssig) könnten verschiedene, in der Nähe liegende, gemessene Banden entsprechen und die Deutung ist recht schwierig. Man muss auch die Möglichkeit einer Verdoppelung dieser Bande in Betracht ziehen, denn eine solche Erscheinung ist beispielsweise bei den Alaunen bekannt<sup>1)</sup>, wobei die eine Bande ungefähr an der Stelle derjenigen des flüssigen Wassers liegt und die andere nach niedrigeren Frequenzen verschoben ist. (Die Ursache hierfür ist noch unabgeklärt).<sup>2)</sup>

Betrachtet man die Intensitäten, so fällt es auf, dass bei der Bande bei  $3400\text{--}3500\text{ cm}^{-1}$  die beiden ausgekochten Schichten eine stärkere Absorption zeigen als die beiden andern, und es liegt infolgedessen nahe, diese Bande dem Wasser zuzuschreiben. Sie wäre damit etwas höher frequent als die Bande des flüssigen Wassers.

3. Noch schwieriger ist die Zuordnung der Banden zwischen  $3100\text{ cm}^{-1}$  und  $3200\text{ cm}^{-1}$ . Möglicherweise entspricht die bei  $3125$  bis  $3135\text{ cm}^{-1}$  der 1. Oberschwingung der Deformationsschwingung ( $1600\text{ cm}^{-1}$  wie beim flüssigen Wasser. Die höhere Intensität bei den ausgekochten Schichten und die wechselnde Intensität bei

<sup>1)</sup> Siehe SCHÄFER-MATOSI, Das ultrarote Spektrum, S. 362ff.

<sup>2)</sup> Eine ähnliche Erscheinung zeigte sich teilweise bei den Messungen von GWYER und PULLEN, wie aus der Tabelle 3 hervorgeht.

Raffinal  $4\ \mu$  deutet auf jeden Fall auf die Zugehörigkeit zu Wasser. Die nur bei den  $4\ \mu$  dicken Schichten erscheinende Bande bei  $3215\text{ cm}^{-1}$  wäre dann dem Oxyd zuzuschreiben, obwohl die Intensität bei Raffinal  $4\ \mu$  ebenfalls schwankte. Bei der nicht nachbehandelten Reflektalschicht  $4\ \mu$  fallen die beiden Banden zusammen.

Selbstverständlich ist es nicht ausgeschlossen, dass eine der genannten Banden wie bei den Alaunen (siehe oben) als Verdoppelung der Wasserbande bei  $3400\text{--}3500\text{ cm}^{-1}$  aufzufassen ist.

4. Weiterhin sind die Banden bei  $5000\text{ cm}^{-1}$  mit grosser Wahrscheinlichkeit dem Wasser zuzuordnen. Die entsprechende Bande des flüssigen Wassers liegt bei  $5050\text{ cm}^{-1}$  (Dampf:  $5350\text{ cm}^{-1}$ ) und wird durch die Kombinationsschwingung der Valenzschwingungen mit der Deformationsschwingung verursacht. Die Frequenz der gemessenen Banden ist — wie bei der Deformationsschwingung — niedriger als die der Wasserbande.

5. Von den weiteren Banden kann höchstens noch die lediglich bei Raffinal  $4\ \mu$ , unbehandelt, gemessene Bande von  $7410\text{ cm}^{-1}$  mit einiger Wahrscheinlichkeit als Wasserbande identifiziert werden. Sie könnte der im Dampf bei  $7300\text{ cm}^{-1}$  ziemlich stark auftretenden 1. Oberschwingung der Valenzschwingungen entsprechen, aber diese Deutung ist unsicher.

An *Korund* wurden einige Messungen im Ultrarot veröffentlicht. In Reflexion sind Maxima bei  $11,8$ ;  $13,5$ ;  $23$  und  $27\ \mu$  gefunden worden<sup>1)</sup> und in Absorption solche bei  $30,5$ ;  $41$  und  $51,5\ \mu$ <sup>2)</sup>. Ausserdem ist ein Ramanspektrum mit folgenden Wellenzahlen bekannt:  $931\text{ cm}^{-1}$  ( $10,75\ \mu$ )  $1191\text{ cm}^{-1}$  ( $8,40\ \mu$ ), und als sehr unsicher bezeichnet:  $536$  und  $728\text{ cm}^{-1}$ <sup>3)</sup>. Das Reflexionsspektrum lässt sich nicht direkt mit unsern Absorptionsmessungen vergleichen und die genannten Absorptionsbanden liegen in einem Bereich, der uns nicht mehr zugänglich war. Beim Ramanspektrum stimmen die beiden ersten Wellenzahlen mit unsern starken Banden bei  $950$  resp.  $1200\text{ cm}^{-1}$  (siehe Tab. 2) überraschend gut überein, obschon es sich um Korund handelte. In diesem Kristall sind nämlich die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molekeln in Form von 3seitigen Doppelpyramiden vorhanden<sup>4)</sup>, während sie in der Oxydschicht sehr wahrscheinlich eine mehr kettenförmige Gestalt haben.

<sup>1)</sup> SCHÄFER-MATOSI, Das ultrarote Spektrum; COBLENTZ, Investigations V (1908).

<sup>2)</sup> PARODI, Recherches dans l'infrarouge lointain.

<sup>3)</sup> HIBBEN, Proc. nat. Acad. U. S. America **18**, 532 (1932).

<sup>4)</sup> Siehe z. B. Handbuch der Physik (GEIGER und SCHEEL), Bd. 24, vgl. Fig. 4.

c) Modellrechnungen zur Bestimmung der Frequenzen von  $Al_2O_3$ .

Solche Rechnungen gehen darauf zurück, dass man jede Bindung in der Molekel als Oszillator betrachten kann. Für 2 durch eine Feder (in unserm Fall chemische Bindung) verbundene Massen gibt die bekannte Formel

$$N = \sqrt{\frac{f}{\mu}} \quad (1)$$

die Kreisfrequenz<sup>1)</sup> der Schwingung an. Dabei ist  $f$  die Federkonstante und  $\mu$  die aus den beiden Massen  $m_1$  und  $m_2$  nach folgender Gleichung berechnete „reduzierte Masse“:

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2}. \quad (2)$$

Es handelt sich nun darum (da die Atomgewichte, also die schwingenden Massen bekannt sind) einen Wert für die Federkonstante zu haben. Da uns aus der Literatur hierüber nichts bekannt geworden ist, mussten wir gewisse Annahmen machen. Die Federkonstante der Bindung Al—Cl in  $Al_2Cl_3$  beträgt nach HIBBEN<sup>2)</sup>  $4,65 \cdot 10^5 \text{ g/s}^2$  und es ist vernünftig anzunehmen, dass diejenige der Bindung Al—O nicht sehr stark davon abweicht.

Andererseits ist es bekannt, dass die Federkonstante einiger Massen proportional der Dissoziationsenergie ist<sup>3)</sup>. Der Proportionalitätsfaktor schwankt für die verschiedenen Bindungen zwischen etwa 0,08 und  $0,17 \cdot 10^{16} \text{ cm}^2$ . Im Mittel kann man

$$0,12 \cdot 10^{16} \text{ cm}^2$$

annehmen.

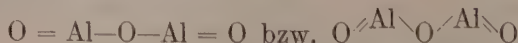
Die Bildungswärme von  $Al_2O_3$  beträgt nach ROTH<sup>4)</sup>

$$D = 398 \text{ kcal/Mol}$$

oder umgerechnet:

$$D = 2,75 \cdot 10^{-11} \text{ erg/Molekel.}$$

Wenn wir nun das gewöhnliche Modell der  $Al_2O_3$ -Molekel, nämlich eine gerade oder geknickte Kette



zugrunde legen, haben wir 6 Valenzen und pro Valenz eine Disso-

<sup>1)</sup> Frequenz  $N = 2 \pi \nu$ . (3)

<sup>2)</sup> HIBBEN, Proc. nat. Acad. U. S. America **18**, 532 (1932).

<sup>3)</sup> Siehe z. B. KOHLRAUSCH, Der Smekal-Raman-Effekt (Berlin 1931), S. 168.

<sup>4)</sup> Z. f. Elektrochemie **48**, 267 (1942).



zationsenergie  $D_v$ , die gleich dem 6. Teil der angegebenen Bildungswärme pro Molekel ist, also

$$D_v = 4,58 \cdot 10^{-12} \text{ erg/Valenz.}$$

Unter Annahme des oben angegebenen mittleren Proportionalitätsfaktors berechnen sich hieraus folgende Federkonstanten:

$$f_1 = 3,82 \cdot 10^5 \text{ g/s}^2 \text{ für die einfache Bindung Al—O}$$

$$f_2 = 7,64 \cdot 10^5 \text{ g/s}^2 \text{ für die Doppelbindung Al=O.}$$

Es ist zu beachten, dass die Grössenordnung durchaus mit der oben angegebenen Federkonstante der Al—Cl-Bindung übereinstimmt.

Mit diesen Federkonstanten lassen sich nun für verschiedene Modelle die Schwingungszahlen berechnen. Aus den Formeln gehen im allgemeinen die Quadrate der Kreisfrequenzen unmittelbar hervor, wobei jedoch in den Einheiten nicht das Gramm, sondern die Atomgewichtseinheit vorkommt. Es gilt also für die Umrechnung der aus Gleichung (1) und ähnlichen Gleichungen (siehe unten) hervorgehenden  $N^2$  (Quadrat der Kreisfrequenzen, wenn Massen in Atomgewichtseinheit und Federkonstante in  $\text{g/s}^2$  angegeben) in Wellenzahlquadrate  $n^2$  folgende Gleichung

$$N^2 = Cn^2 \quad (4)$$

wobei

$$C = \frac{4\pi^2 c^2}{L} = 5,863 \cdot 10^{-2}$$

$c$  = Lichtgeschwindigkeit.  $L$  = LOSCHMIDT'sche Zahl.

1. 2 schwingende Massen, Hantelmodell. Al = O, resp. Al—O. Entsprechend den Gleichungen (1) und (4) findet man:

$$\text{Al—O: } n_{11} = 805 \text{ cm}^{-1}$$

$$\text{Al=O: } n_{12} = 1140 \text{ cm}^{-1}$$

(Der Index enthält die Nummer unseres Modells (1) und die laufende Nummer (1 und 2)). Dabei ist zu bemerken, dass eine dem einfachen Al—O-Hantelmodell entsprechende Schwingung bei der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molekel wahrscheinlich nicht vorkommen wird, da der „einfach“ gebundene Sauerstoff zwischen den beiden Al-Atomen liegt. Die Frequenz der Doppelbindung wird jedoch voraussichtlich verhältnismässig unverändert auftreten.

2. 3 schwingende Massen:  $\text{OAl}-\text{O}-\text{AlO}$ .

Wir betrachten in diesem Annäherungsmodell 2 die doppelt-gebundenen Sauerstoffatome als starr mit den Al-Atomen mit-schwingend. Die Formeln für die Berechnung der Schwingungen eines solchen symmetrischen, gestreckten 3-Massenmodells lauten in einer geeigneten Formulierung folgendermassen<sup>1)</sup>:

$$\left. \begin{aligned} N_{21}^2 &= \frac{f}{m} \\ \text{(symmetrisch, im Ultrarot nicht zu erwarten)} \\ \text{analog der Schwingung } \nu_1 \text{ in Fig. 2} \\ N_{22}^2 &= \frac{f}{m} p \\ \text{(antisymmetrisch, im Ultrarot zu erwarten)} \\ \text{analog der Schwingung } \nu_2 \text{ in Fig. 2} \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

wobei

$m$  = äussere Masse (Al + O)

$M$  = innere Masse (O)

$$p = \frac{M + 2m}{M}.$$

Die dritte (in den Formeln nicht erwähnte) Schwingung ist die Deformationsschwingung analog der Schwingung  $\delta$  in Fig. 2, zu deren Berechnung uns die Kenntnis der Deformationskonstante fehlt. In den Formeln (5) setzen wir unser  $f_1$  (Einfachbindung) ein und erhalten mit Hilfe von Gleichung (4):

$$n_{21} = 390 \text{ cm}^{-1} \text{ (bei uns nicht zu erwarten)}$$

$$n_{22} = 978 \text{ cm}^{-1}.$$

Die Schwingung  $n_{22}$  sollte nun eine bedeutend bessere Annäherung an die wirklich auftretende, den Einfachbindungen entsprechende Frequenz sein als die mit Hilfe des Modells 1 berechnete, da nun die *beidseitige* Bindung von O an Al berücksichtigt ist.

## 3. 5 schwingende Massen in einer Kette.

Die Formeln für die Schwingungen einer geknickten, 5gliedrigen Kette (in welcher Gestalt ja die  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molekel nach der gewöhnlichen Anschauung vorliegt) sind in expliziter Form noch nirgends veröffentlicht worden. Für die gestreckte, symmetrische

<sup>1)</sup> Siehe z. B. KOHLRAUSCH, Smekal-Raman-Effekt (Berlin 1931) und Ergänzungsband dazu (1938).

Kette sind die Formeln bekannt<sup>1)</sup>. Wir geben hier die Gleichungen für die beiden einzig für uns in Betracht kommenden, im Ultrarot aktiven Kettenschwingungen. (Die Deformationsschwingungen können wir wiederum aus Mangel an Anhaltspunkten für die Deformationskonstanten nicht berechnen).

$$\begin{aligned} N_{31}^2 + N_{32}^2 &= \frac{f_1}{m_1} \left( 1 + 2 \frac{m_1}{m_3} \right) + \frac{f_1}{\mu} \\ N_{31}^2 \cdot N_{32}^2 &= \frac{f_1}{m_1} \cdot \frac{f_2}{m_2} \left( 1 + 2 \frac{m_1}{m_3} + 2 \frac{m_2}{m_3} \right) \end{aligned} \quad (6)$$

wobei

$$\frac{1}{\mu} = \frac{1}{m_1} + \frac{1}{m_2}.$$

Die Bezeichnung der Massen und der Federkonstanten der Bindungen, sowie die Form der beiden ultrarot-aktiven Ketten-

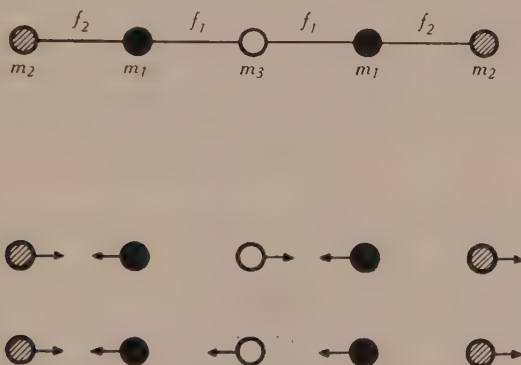


Fig. 3.

Das gestreckte, symmetrische 5-Massen-Modell.

oben: Bezeichnungen, unten: die beiden im Ultrarot aktiven Kettenschwingungen. schwingungen gehen aus der Fig. 3 hervor. In unserm Fall ist also

$$\begin{aligned} m_1 &= 27 \text{ (Al)} \\ \text{und } m_2 &= m_3 = 16 \text{ (O)}. \end{aligned}$$

Für  $f_1$  und  $f_2$  setzen wir wieder unsere bekannten Federkonstanten ein und erhalten unter Berücksichtigung der Gleichung (4)

$$\begin{aligned} n_{31} &= 900 \text{ cm}^{-1} \\ n_{32} &= 1243 \text{ cm}^{-1}. \end{aligned}$$

Man kann wiederum die niedrigere Frequenz  $n_{31}$  dem beidseitig

<sup>1)</sup> KOHLRAUSCH, Smekal-Raman-Effekt, Ergänzungsband (Berlin 1938); ENGLER-KOHLRAUSCH, Z. physik. Chemie, Abt. B, **34**, 214 (1936).



einfach gebundenen O-Atom und die höhere Frequenz  $n_{32}$  der Doppelbindung zuordnen, aber die Zuordnung verliert immer mehr ihren Sinn, da eben das Zusammenspiel aller 5 Massen die berechneten Frequenzen ergibt.

#### 4. 5 schwingende Massen in einer Doppelpyramide.

Die Atome der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molekel können auch in einer Doppelpyramide mit dreieckigem Querschnitt (siehe Fig. 4) angeordnet sein. So finden sie sich z. B. im Korund und es wäre denkbar, dass auch in der Oxydschicht die Molekeln so aussehen. (Wie schon erwähnt, nimmt man gewöhnlich die Form einer gewinkelten Kette

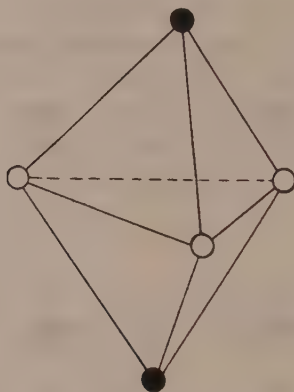


Fig. 4.

Anordnung der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molekel im Korund.

leere Kreise: O-Atome      volle Kreise: Al-Atome.

an). Die Schwingungen eines solchen Pyramidenmodells lassen sich nur berechnen, wenn die Deformationskonstanten bekannt sind. Da wir hierüber keine Anhaltspunkte haben, besteht keine Möglichkeit, eine Rechnung durchzuführen. Es ist jedoch einleuchtend, dass auch dieses Modell eine Frequenz, die der Anordnung  $\text{Al}-\text{O}-\text{Al}$  zugehört, haben muss, während eine Schwingung der Gruppe  $\text{Al}=\text{O}$  nicht auftreten wird.

Wir stellen nun die aus den verschiedenen Modellen berechneten Kettenzahlen der nach der bekannten Theorie im Ultrarot zu erwartenden Schwingungen der Molekel  $\text{Al}_2\text{O}_3$  mit den stärkeren gemessenen Absorptionsbanden zusammen, die nach unsern bisherigen Betrachtungen nicht durch das Wasser (also sehr wahrscheinlich eben durch das Oxyd) verursacht werden (siehe Tab. 5).

Dabei muss man sich klar darüber sein, dass die Bestimmung der Federkonstanten, auf welcher unsere ganze Schwingungsberechnung beruht, sehr unsicher ist.

Tabelle 5.

Zuordnung	Modell 1 (2 Massen)	Modell 2 (3 Massen)	Modell 3 (5 Massen)	Absorptionsbanden
Al—O—Al in Klammern Al—O	(805 cm <sup>-1</sup> )	978 cm <sup>-1</sup>	900 cm <sup>-1</sup>	945 – 980 cm <sup>-1</sup> (resp. 895 – 910 cm <sup>-1</sup> )
Al = O	1140	—	1243	1170 cm <sup>-1</sup> (resp. 1130 cm <sup>-1</sup> )

Die Übereinstimmung ist trotz der unsichern Grundlagen gar nicht schlecht und sogar für die einfachern Modelle besser als für das 5-Massen-Modell. Man darf daraus einerseits den Schluss ziehen, dass die Deutung dieser beiden, sicher nicht dem Wasser zugehörigen Oxydbanden plausibel gemacht ist, und andererseits scheint aus der Übereinstimmung auch hervorzugehen, dass die Grösse der von uns berechneten Federkonstanten ziemlich gut den wirklichen Verhältnissen entspricht.

#### d) Deutung der Ergebnisse, Schlussfolgerungen.

Im folgenden sei in der Tabelle 6 der Versuch einer Deutung der gemessenen Banden auf Grund und in Vervollständigung der Überlegungen der vorhergehenden Abschnitte gemacht. In der Kolonne 1 finden sich die durchschnittlichen Intensitäten und in den Kolonnen 2 bis 5 die Wellenzahlen der an den 4 verschiedenen Schichten gemessenen Absorptionsmaxima. Dabei sind die Banden der Intensität 0 im allgemeinen weggelassen worden. In der 6. Kolonne ist die Zuordnung zu einer Schwingung und in der 7. Kolonne bei den H<sub>2</sub>O-Schwingungen die Wellenzahl der entsprechenden Absorptionsbande des flüssigen Wassers angegeben (siehe Tab. 4). Die 8. Kolonne enthält die berechneten Wellenzahlen der Schwingungen der Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Molekel, und zwar die den beobachteten Wellenzahlen näher liegenden Zahlen (siehe Tab. 5).

Zusammenfassend lassen sich folgende Schlussfolgerungen ziehen:

1. Die beiden Valenz- (bzw. Ketten-)Schwingungen der Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Molekel, die erwartungsgemäss im Ultrarot eine Absorption verursachen müssen, konnten wir anhand von Modellrechnungen der Grössenordnung nach bestimmen und damit plausibel machen, dass

Tabelle 6: Deutung.

Gemessene Banden (siehe Tab. 2)					Versuch einer Deutung	Bekannte Banden des flüss. $\text{H}_2\text{O}$ $\text{cm}^{-1}$	Berechnete Schwingungen von $\text{Al}_2\text{O}_3$ $\text{cm}^{-1}$
Intensität	Raff. 4. $\mu$ $\text{cm}^{-1}$	Raff. 4 $\mu$ ausgekocht $\text{cm}^{-1}$	Ref. 4 $\mu$ $\text{cm}^{-1}$	Ref. 1 $\mu$ ausgekocht $\text{cm}^{-1}$			
5	957 (945—980)	957 (945—980)	957 (945—980)	895—910	$\text{Al}_2\text{O}_3$ (Al—O—Al) $\nu_1$		978
5	1170	1170 (1150—1190)	1170 (1150—1190)	1130	$\text{Al}_2\text{O}_3$ (Al = O) $\nu_2$		1140
2	1575	1600	1575	1600	$\text{H}_2\text{O}$ $\delta$ : Deformationsschwingung	1640	(— 2280)
2	2410	2410	2500	(3135)	$\text{Al}_2\text{O}_3$ (2 $\nu_2$ ?)	3135 (Dampf)	
2—3	3135	3125—3145	3135—3215		$\text{H}_2\text{O}$ 2 $\delta$		
2—3	3215	3215			$\text{Al}_2\text{O}_3$ ?		
2	3520	3520	3370—3450	3420	$\text{H}_2\text{O}$ $\nu$ : Valenzschwingung	3370	
1		3980	*				
1	4930	4930	5130			5050	
1	5750	5750	5780		$\text{H}_2\text{O}$ $\nu + \delta$		
1		5990		(5990)			
1	6620		6330				
1	7410		*				
2	11100	11760	*	(11760)	$\text{H}_2\text{O}$ 2 $\nu$ ?	7300 (Dampf)	

\*) In diesem Gebiet wurde nicht gemessen.

die von uns bei  $900\text{--}950\text{ cm}^{-1}$ , resp. bei  $1130\text{--}1170\text{ cm}^{-1}$  gefundenen Absorptionsbanden tatsächlich dem Aluminium-Oxyd angehören.

2. Weitere Banden bei  $2400\text{--}2500\text{ cm}^{-1}$  und bei  $3200\text{ cm}^{-1}$  sind sehr wahrscheinlich ebenfalls von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  verursacht. Die Oxydbanden sind u. a. daran kenntlich, dass die Schicht, die nur 1 Mikron dick ist, eine geringere Intensität ergeben muss als die 4 Mikron dicken. Ob es sich um Harmonische der genannten Valenzschwingungen oder um Kombinationsfrequenzen, eventuell mit Deformationsschwingungen handelt, ist nicht bekannt.

3. Die Deformations-(Knick-)Schwingungen der  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Molekel liegen sicher bei so niedrigen Wellenzahlen, dass sie nicht mehr im Bereich unserer Messungen liegen. Das kann aus der bekannten Erfahrung geschlossen werden, dass die Deformationskonstanten immer kleiner sind als die Federkonstanten der Valenzschwingungen.

4. Die bekannten Banden des Wassers (hauptsächlich des flüssigen) konnten wir in unseren Absorptionsspektren ebenfalls finden. Dies ist zu erwarten, da die Oxydschicht sicher Wasser enthält und da z. B. auch das Kristallwasser in Kristallen die Wasserbanden liefert.

5. Besonders aufschlussreich ist das Auftreten der Bande bei  $1600\text{ cm}^{-1}$ , die der Deformationsschwingung des Wassers entspricht. Diese Tatsache zeigt, dass ganze  $\text{H}_2\text{O}$ -Molekeln in der Oxydschicht vorhanden sein müssen (auch in der nicht ausgekochten) und dass das Wasser *nicht* in der Form eines eigentlichen Hydroxyds  $\text{AlO}(\text{OH})$  oder  $\text{Al}(\text{OH})_3$  vorhanden, sondern dem Oxyd nur angelagert ist.

6. Der Wassergehalt der Schicht ist anscheinend veränderlich, je nach Luftfeuchtigkeit. Das äusserte sich bei uns manchmal darin, dass die Intensität der Wasserbanden nicht immer gleich war. Der Unterschied der Absorptionsspektren der ausgekochten und nicht ausgekochten Schichten ist verhältnismässig gering.

7. Die Bande bei  $3215\text{ cm}^{-1}$  muss möglicherweise auch dem Wasser zugeschrieben werden. Das würde dann darauf hindeuten, dass verschieden stark gebundene OH-Gruppen in der Schicht vorhanden sind. Eine Parallele ist vielleicht die Verdoppelung der Wasserbanden bei den Alaunen. Wir halten jedoch die Deutung als Oxydbande für wahrscheinlicher.

8. Die Übereinstimmung der vorliegenden Messungen mit bisher bekannten ist gut. Das ultrarote Absorptionsspektrum der Aluminiumoxydschicht ist bisher allerdings erst im Gebiet der Wasser-



bande bei  $3400\text{ cm}^{-1}$  untersucht worden<sup>1)</sup>. Das Ramanspektrum von KORUND zeigt ähnliche (allerdings als unsicher bezeichnete) Frequenzen, wie sie auch hier festgestellt worden sind<sup>2)</sup>. Die von uns erwähnten Valenzschwingungen von  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sollten tatsächlich im Ramanspektrum nicht oder höchstens sehr schwach auftreten. Dazu ist zu bemerken, dass sich wegen der wahrscheinlich andern Anordnung der Atome das Korundspektrum mit dem Spektrum der Oxydschicht nicht direkt vergleichen lässt.

Zum Schluss sei den Herren Proff. HUBER und MIESCHER von der Physikalischen Anstalt der Universität Basel für die Überlassung des Ultrarotspektrometers der herzlichste Dank ausgesprochen. Ebenso danke ich Herrn Dr. SCHÖNMANN (Davos) für seine anfängliche Mitarbeit in Basel und besonders auch der Aluminiumindustrie A.G. für die Erlaubnis zur Veröffentlichung.

Neuhausen

Forschungsinstitut der Aluminium-  
Industrie A.G. (Chippis).

---

<sup>1)</sup> GWYER & PULLEN, Metal Industry (London) **56**, 7 und 33 (1940).

<sup>2)</sup> HIBBEN, Proc. nat. Acad. U. S. America, **18**, 532 (1932).

---

## Beiträge zur Wirkungsweise des Funkenzählers

von Paul Frey.

(2. II. 1946.)

*Zusammenfassung.* Der Einfluss von Dämpfen, insbesondere derjenige des Wasserdampfes, auf die Zähleigenschaften des Funkenzählers wird untersucht. Mit Hilfe einer Apparatur, die die Funkenzählung in strömenden Gasen von definierter Feuchtigkeit erlaubt, wird festgestellt: Zunehmende Trocknung der Gase führt zu einer vom Elektrodenmaterial abhängigen Vermehrung der spontanen Funken und damit zu einer Verkleinerung, bei  $N_2$  und  $H_2$  sogar zu einem Verschwinden des Zählbereichs. Pt-Elektroden in Luft erweisen sich als nur schwach feuchtigkeitsempfindlich und zeigen wenig natürliche Stösse, so dass sich Platin-kugelfunkenstrecken, eingeschlossen in luftgefüllten, staubfreien Glaskugeln, durch grossen Zählbereich (Überspannungen von über 3000 Volt!) und zuverlässiges, konstantes Arbeiten auszeichnen.

Nachdem die Alterungseffekte der Elektroden und verschiedene apparativ bedingte Einflüsse, einschliesslich Auflösevermögen und Korrekturen, abgeklärt und berücksichtigt waren, erwies sich die Zählkurve des Funkenzählers, deren Abhängigkeit vom Abstand und von der Krümmung der Elektroden noch besonders untersucht wurde, trotz der Vielzahl von Parametern als gut reproduzierbar. Als Kriterium und einfach zu realisierende Bedingung für die Zähl-tüchtigkeit einer Elektrodenanordnung nach GREINACHER ergibt sich das Ausbleiben der Nachwirkung, meist daran erkenntlich, dass der Nulleffekt äusserst gering ist.

Anhand statistischer Analysen wird gezeigt, dass der Funkenzähler die Statistik des radioaktiven Zerfalls exakt wiedergibt. Mit Hilfe des Abstandsgesetzes kann die Proportionalität zwischen Funkenfrequenz und Bestrahlungsintensität bestätigt werden. Die natürlichen Funken hingegen weisen, soweit sie nicht durch Strahlungen bedingt sind, bei der statistischen Untersuchung keine rein zufällige Verteilung auf und lassen sich bei quantitativen Messungen auch nicht als additive Komponente in Rechnung ziehen. Im Zusammenhang damit erfährt auch die bisherige Darstellung des Zählvorganges eine Modifikation durch die Auffassung, dass es sich hier um eine besonders hohe Funkenverzögerung handelt, die jeweils durch ein einzelnes ionisierendes Teilchen aufgehoben wird.

Die Untersuchungen über den Zusammenhang zwischen Funkenraum und Funkenzahl führen zum Ergebnis, dass nicht nur die Grösse, sondern auch die Empfindlichkeit des Zählvolumens mit der Spannung zunimmt. Trotzdem gelingt es, wenigstens für  $\alpha$ -Strahlen, auch beim Funkenzähler zu einer Zählkurve mit „horizontalem“ Bereich von der Art einer Zählrohrcharakteristik zu kommen, wenn mit Hilfe durchbohrter Kathoden nur die zentralen, vollempfindlichen Teile des Zählvolumens benützt werden.

## § 1. Einleitung.

Der von GREINACHER<sup>5)6)7)8)9)</sup> entwickelte Funkenzähler bietet nicht nur als neues Gerät neben Spitzenzähler und Zählrohr Interesse, er ist auch vom Standpunkt der Durchschlagsforschung aus bemerkenswert. Einmal wird hier gezeigt, dass durch geeignete Anordnung der Funkenelektroden Zündung durch einzelne Elementarteilchen bewirkt werden kann, dann aber auch, dass diese Zündung unter leicht realisierbaren Bedingungen nachwirkungsfrei arbeitet, was die Anwendung der Funkenauslösung durch Elementarteilchen für Zählzwecke erst ermöglicht. Die bisherigen Untersuchungen über den Einfluss der Bestrahlung auf den Funkenübergang (ZUBER<sup>26)27)</sup>, BRAUNBECK<sup>3)</sup>, BATH<sup>2)</sup>, HERTZ<sup>12)</sup> u. a.) bezogen sich vornehmlich auf das Funkenpotential und den Entladeverzug. Zur Unterdrückung der Nachwirkung mussten bei den üblich verwendeten Elektrodenanordnungen besondere Vorkehrungen getroffen werden, z. B. Unterbrechen der Spannung nach jeder Entladung (ZUBER) oder Rotierenlassen der Kathode (BATH).

Andere Verhältnisse bietet die Funkenzähleranordnung. Über die verschiedenen Ausführungsformen und die Wirkungsweise des Funkenzählers ist bereits in einer Reihe von Arbeiten (GREINACHER<sup>5)6)7)8)9)</sup>, STUBER<sup>22)</sup>, JEANGUENIN<sup>13)</sup>) berichtet worden. Vorliegende Arbeit schliesst an diese Untersuchungen an und beschäftigt sich hauptsächlich mit folgenden Fragen und Aufgaben: unter Beizug statistischer Methoden Zählbereich und Zählkurve des Funkenzählers genauer zu erfassen und festzulegen, ihre Beeinflussung durch die geometrischen Verhältnisse der Elektroden und durch den Wasserdampfgehalt der Luft sowie ihr Verhalten in den Gasen  $N_2$ ,  $H_2$ ,  $O_2$  und  $CO_2$  zu untersuchen und schliesslich den Nachweis für die Eignung zu quantitativen Messungen zu erbringen.

Sämtliche Untersuchungen wurden an dem durch zwei feste Elektroden gekennzeichneten „gewöhnlichen Funkenzähler“ durchgeführt mit den Elektrodenkombinationen Kugel-Platte und Kugel-Kugel. Was die geeigneten Elektrodenmaterialien und ihre günstige Vorbehandlung betrifft, wurden die Erfahrungen von GREINACHER und STUBER herangezogen.

Als Strahlungsquellen für  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlen wurden zwei Radiumpräparate mit der Stärke von ca. 0,5 und 0,1 mg, für  $\alpha$ -Strahlen ein stärkeres und schwächeres Poloniumpräparat aus dem Wiener Radiuminstitut und für U. V. das Licht einer Quecksilberdampfbogenlampe benutzt. Den beiden Poloniumpräparaten kam zur Zeit, als die hier mitgeteilten Messungen ausgeführt wurden, eine Stärke von ca. 330 bzw. 0,25 e. st. E. zu.

Die meistverwendeten Abkürzungen bedeuten:

- $V_0$  = untere Grenze des Zählbereichs für Ra-Bestrahlung  
 = Funkenpotential  
 $V_b$  = Betriebsspannung des Funkenzählers  
 $\Delta V = V_b - V_0$  = Überspannung  
 $n$  = Funkenfrequenz = mittlere Funkenzahl pro Minute (Korrekturen berücksichtigt)  
 $r$  = Radius der kugelförmigen Elektroden  
 $d$  = Elektrodenabstand  
 $\sigma$  = relative Feuchtigkeit.  
 Bei statistischen Messungen ausserdem:  
 $n_0$  = Zahl der ausgewerteten Funken (Korrekturen nicht berücksichtigt)  
 $t_0$  = Zeit, in der die  $n_0$  Funken übergingen  
 $\bar{n} = \frac{n_0}{t_0}$  = Funkenfrequenz = mittlere Funkenzahl pro Minute (Korrekturen nicht berücksichtigt)  
 $\tau$  = Auflösungsvermögen.

## § 2. Versuchsanordnung.

### a) Schaltung.

Fig. 1 gibt die Schaltung wieder, die im Prinzip mit derjenigen von STUBER<sup>22)</sup> übereinstimmt. Als Verstärker diente das gleiche Quecksilberthyatron  $Th$ , wobei wiederum die von STUBER be-

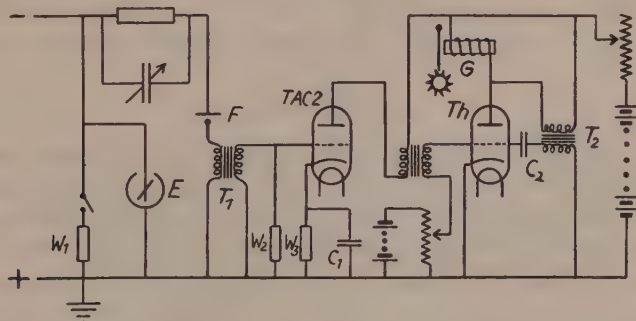


Fig. 1.

schriebene Eigenschaft der selbständigen Löschung benützt wurde, die auch von anderer Seite (LION<sup>17)</sup>) schon erwähnt worden ist.

Es wurden jedoch folgende Änderungen getroffen: Parallel zum Gesprächszähler  $G$  (Fig. 1) wurde die Primärwicklung eines Niederfrequenztransformators  $T_2$  (1:5) geschaltet, dessen Sekundärseite über den auswechselbaren Kondensator  $C_2$  (ca.  $\frac{1}{2}$  MF) mit dem Gitter des Thyratrons  $Th$  so verbunden war, dass die Im-



pulse der Anodenspannung zum automatischen Löschen des Thyratrons beitrugen. Diese Zusatzglieder bewirkten bei einer negativen Gittervorspannung des Thyratrons von 20—30 Volt scharf begrenzte Stromstösse, die wiederum zu kurzen und präzisen Schlägen des Zählers führten, der bei sorgfältiger Regulierung seiner Federn bis zu 2000 Stösse pro Minute registrierte.  $C_2$  hatte auch weitgehend Einfluss auf das Auflösungsvermögen des Thyatronkreises, welches somit dem Auflösungsvermögen des mechanischen Zählers angepasst werden konnte (vgl. § 4, b).

Im Verlaufe der weitem Abnützung des Thyratrons erwies es sich als zweckmässig, eine Verstärkerstufe einzuschalten. Die Spannungsimpulse des Transformators  $T_1$  wurden mittels Triode  $TAC\ 2$  verstärkt. Die Widerstände  $W_2$  und  $W_3$  waren von der Grössenordnung 0,1 Megohm, bzw. 900 Ohm, und  $C_1$  war ein Elektrolytkondensator von 1000 MF.

Zur Messung der Hochspannung dienten zwei BRAUNSCHE Elektrometer  $E$  mit den Bereichen 0—3500 und 0—10000 Volt, Ablesegenauigkeit: 10 bzw. 50 Volt. Gelegentliche Kontrollmessungen mit einem WULFSCHEN Hochspannungselektrometer bestätigten die Zuverlässigkeit dieser Instrumente, deren Eichung auf dem Eidg. Amt für Mass und Gewicht vorgenommen wurde.

Die Spannungsregelung für den Funkenkreis mit der Funkenstrecke  $F$  erfolgte auf der Primärseite des Hochspannungstransformators mittels Potentiometer. Für Spannungssenkungen konnte dem Hochspannungskondensator die nötige Elektrizitätsmenge durch einen hochohmigen Flüssigkeitswiderstand  $W_1$  entzogen werden.

#### b) Die Elektrodengefässe.

Wo bei den nachfolgenden Versuchen nichts anderes vermerkt ist, waren die Elektroden gemäss Fig. 2 in einem zylindrischen Glasgefäss eingeschlossen. Dieses Gefäss hatte vier seitliche Ansätze:  $A_1$  und  $A_2$  zur Zuführung und Ableitung der Gase,  $A_3$  zum Einschieben von Chemikalien und radioaktiven Präparaten,  $A_4$  (gegenüber  $A_3$ ), abgeschlossen durch ein Quarzfenster, zur Bestrahlung mit U. V. Man hat sich  $A_3$  und  $A_4$  in Fig. 2 senkrecht zur Zeichnungsebene zu denken.

Die beiden eingeschliffenen Stopfen  $S_1$  und  $S_2$  trugen durch Glasröhrchen gehaltete Messingträger mit Gewinde, an denen sich bei  $S_2$  ein Kathodenträger  $K$  und bei  $S_1$  eine Schraubenmutter  $M$  aufsetzen liessen. Die Anode  $An$  war auswechselbar in einer Messingschiene  $Ms$  befestigt, die sich in einer im Gefäss festgeklammten Führung aus Messingblech mittels  $M$  durch Drehen von  $S_1$  ver-

schieben liess.  $M$  war zufolge eines mit der Messingführung verbundenen Ansatzes  $A$  am Drehen verhindert, und eine Feder  $F$  drückte  $M$ s ständig gegen  $M$ .

In den Kathodenträger  $K$  wurden die Kathoden als runde Plättchen von 11 mm Durchmesser eingesetzt. Ein weiterer Kathodenträger ermöglichte das Einsetzen drahtförmiger Kathoden. Für Messungen orientierenden Charakters bei Unterdruck liess sich eine Funkenstrecke mit starr verbundenen Elektroden ins Gefäss einführen.

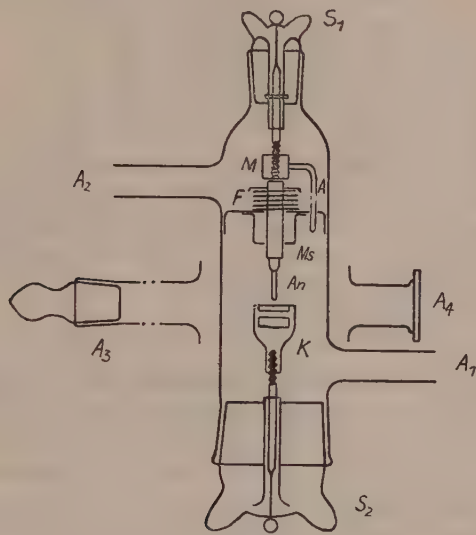


Fig. 2.

Es erwies sich als zweckmässig, die Kathode auf Spannung und die Anode auf Erdpotential zu legen. Zur sichern Isolation wurde der Kathodenstopfen mit Siegellack überzogen und das Gefäss innen und aussen mit geerdeten Stanniolringen versehen, obschon festzustellen war, dass selbst künstlich erzeugte Wandladungen keinen Einfluss ausübten.

Zur Dichtung der Schliffe diente Apiezonöl und zum Anschluss von Rohrteilen an die Ansätze  $A_1$  und  $A_2$  weisser Siegellack. Über die Druckverhältnisse im Innern des Elektrodengefässes orientierte ein mit  $A_2$  verbundenes offenes Quecksilbermanometer (vgl. Fig. 4).

Um eine scharfe Trocknung durch Ausheizen zu ermöglichen, wurde ein besonderes Elektrodengefäss aus Duranglas (Fig. 3) mit zwei eingeschmolzenen Elektrodenpaaren angefertigt, von denen

jeweilen das eine zu Kontrollzwecken diene. Das Elektrodengefäss sei fortan mit „Kugelgefäss“ bezeichnet. Die Kügelchen der sich durch gute Konstanz auszeichnenden Platinelektroden waren die Metalltropfen (Durchmesser durchschnittlich 1,6 mm), wie sie sich beim Erhitzen der Drahtenden im Knallgasgebläse von selbst ergeben. Die Elektrodenkugeln besaßen einen äussern Durchmesser von 22 mm und eine Wandstärke von 1 mm. Durch einen Rohr-



Fig. 3.

ansatz, der auch die Evakuierung des Gefässes erlaubte, konnte die grosse Kugel mit Trockenmitteln beschickt werden. Da die Pt-Elektroden, wie später zu zeigen ist, auch in trockener Luft ihre Zähleigenschaften nicht verlieren, wurde ständig Phosphorpentoxyd im Kugelgefäss belassen.

### c) Gaswechsel und Befeuchtung.

Da zuerst der Einfluss des Wasserdampfes abgeklärt werden sollte, wurde, wie in Fig. 4 wiedergegeben, dem zylindrischen Elektrodengefäss beim Ansätze  $A_1$  (Fig. 2) eine Befeuchtungsanlage vorgeschaltet, in der den Gasen Wasser- und andere Dämpfe beigemischt werden konnten. Eine am Hahn  $H_{10}$  angeschlossene Wasserstrahlpumpe sorgte für die Gaszirkulation, deren Stärke sich durch  $H_9$  regulieren und durch einen improvisierten Strömungsmesser  $S$  oder durch Zählen der Gasblasen in der Waschflasche  $W_4$  kontrollieren liess. Die zu untersuchenden Gase strömten bei  $H_1$  in die Apparatur ein, wo sie eine vorläufige Trocknung über  $P_2O_5$  im leicht auswechselbaren Gefäss  $R_1$  erfuhren. Im Filterrohr  $R_2$  erfolgte durch Passieren eines mit Apiezonöl eingeriebenen Seidenlappens und eines 20 cm langen Pfropfens aus Glaswolle eine Entstaubung, darauf eine weitere Trocknung mit  $P_2O_5$  in  $R_3$ , dann in  $R_4$  eine Überleitung über festes KOH zum Entzuge des  $CO_2$  und schliesslich eine letzte Trocknung im 115 cm langen Rohr  $R_5$ , das mehrere mit  $P_2O_5$  bestäubte Glaswollepfropfen enthielt.

Ein beliebiger Teil des so getrockneten Gasstromes konnte nun durch das mit nassen Filtrierpapierstreifen gefüllte Feuchtgefäss  $D_1$  geleitet und mit Wasserdampf gesättigt werden, so dass bei der Vereinigung mit dem trocken gebliebenen Teilstrom der gewünschte Feuchtigkeitsgrad entstand.

Die Verteilung des Luftstromes erfolgte nicht durch die Hahnen  $H_3$  und  $H_4$ , welche immer ganz geöffnet oder ganz geschlossen waren, sondern durch Glasdüsen verschiedenen Durchmessers, die sich mittels einer Messingfassung auf das Rohr  $R_6$  der Waschflasche  $W_1$  aufschrauben liessen. Diese Düsen bewährten sich in bezug auf Konstanz und Reproduzierbarkeit der Feuchtigkeitsverhältnisse so gut, dass sie geeicht werden konnten.

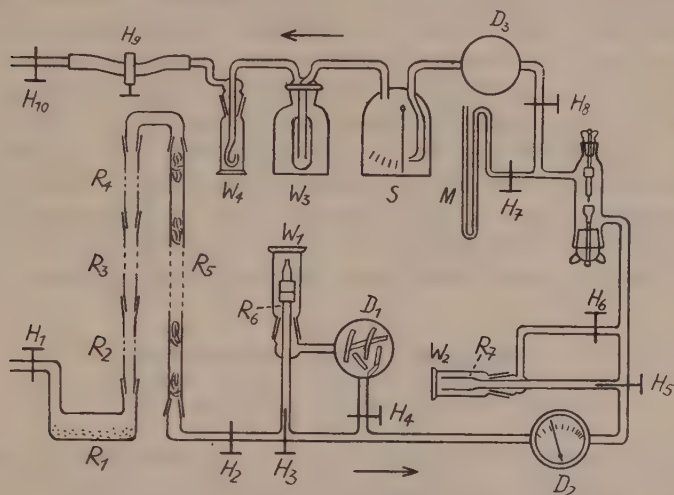


Fig. 4.

Das befeuchtete Gas durchsetzte dann die Glasdose  $D_2$  mit Haarhygrometer so, dass das Haar vom Gas gut bespült wurde. Darauf konnte das Gas dem Elektrodengefäß direkt oder durch eine parallel geschaltete Waschflasche  $W_2$  zugeführt werden, die die Beimischung weiterer Dämpfe erlaubte. Feste Stoffe (z. B. Kampfer) wurden mit Hilfe von Glaswolle in das Rohr  $R_7$  eingeschlossen, was eine ausgiebige Bespülung durch die hindurchströmende Luft gewährleistete. Flüssige Stoffe (z. B. Äther) wurden in kleinen Mengen in die waagrecht liegende Waschflasche  $W_2$  gegossen.

$W_3$  war eine Sicherung gegen allfällig von der Pumpe oder von  $W_4$  her zurückfließendes Wasser, und  $D_3$  erlaubte durch Hinüberwechseln des Hygrometers aus  $D_2$  die Messung der Feuchtigkeit hinter dem Elektrodengefäß.

Die Glasteile wurden jeweils nach dem letzten Reinigungsprozess mit Seifenwasser 20—30 Minuten in destilliertem Wasser ausgekocht.



Für eine gute Entstaubung der Gase sorgten das Filterrohr  $B_2$  und die zahlreichen Glaswollepfropfen; denn abgesehen von den dampfförmigen Beimischungen der Gase sind es vor allem die staubförmigen Verunreinigungen, die wie bei allen Durchschlagsmessungen auch beim Funkenzähler zu erheblichen Störungen führen können. Während in den geschlossenen Elektrodengefässen unter günstigen Zählbedingungen Störungen monatelang ausblieben, kam es bei offenen Funkenstrecken in freier Zimmerluft immer wieder vor, dass die Zählwirkung und jegliche mit elementaren Mitteln wahrzunehmenden Funkenverzögerungen plötzlich aufhörten und regelmässige Funkenfolgen in der Art von Kippentladungen auftraten. In den meisten Fällen gelang es, die Ursache dieses Versagens einwandfrei abzuklären, indem an einer der beiden Elektroden mikroskopisch oder sogar von blossen Auge Staubbäsechen wahrzunehmen waren. Die Tatsache, dass bei Verwendung filtrierter Gase Störungen dieser Art sozusagen nie vorkamen, lässt die Wichtigkeit staubfreier Gase deutlich genug erkennen.

### § 3. Messverfahren und Kontrollmessungen.

#### a) Die Behandlung der Elektroden.

Besondere Aufmerksamkeit wurde wiederum der Vorbehandlung der Elektroden gewidmet. STUBER<sup>22)</sup> weist darauf hin, dass die mit feinstem Schmirgelpapier polierten Elektrodenflächen jeweilen erst nach Übergang von ca. 5000 Funken zur Zählung brauchbar wurden. Weitere Untersuchungen über diesen Effekt — er möge als „Alterung“ bezeichnet werden — führten zur Erkenntnis, dass die Zahl der zur Alterung nötigen Funken abhängig ist vom Elektrodenmaterial, von der Grösse der Schmirgelfurchen, von der Funkenintensität, bzw. von der Überspannung, und von allfälligen Verunreinigungen (Oxyde, Fettschichten, Staub). Fig. 5 soll für den Fall zweier Platinkugeln bei verschiedener Rauhheit der Oberflächen zum Ausdruck bringen, in welcher Weise die Funkenfrequenz mit fortschreitender Alterung abnimmt. Der Zeitpunkt  $t=0$  bedeutet den Moment, wo die Spannung an die frisch geschmirgelten oder polierten Elektroden angelegt wird. Die als Ordinaten aufgetragenen Funkenfrequenzen beziehen sich jeweilen auf den Zeitabschnitt zwischen den Mitten des vorangehenden und des anschliessenden Intervalls. Eine konstante Bestrahlung mit Radium, der die Schlussfrequenz von ca. 80 Funken pro Minute entsprach, sorgte für den gleichmässigen Ablauf der qualitativ gut reproduzierbaren Versuche.

Man ersieht aus Fig. 5, dass die glatt polierten Elektrodenflächen einen kleinen, die feingeschmirgelten einen mittlern und die grobgeschmirgelten einen grossen Alterungseffekt aufweisen. Je tiefer also die Schmirgelfurchen, bzw. je höher die Schmirgelberge sind, desto mehr Funken sind nötig, bis die Elektroden mit der gewünschten Konstanz arbeiten. Es drängt sich die Vorstellung auf, dass die Autoemission der Elektronen (Spitzenwirkung) mitspielt, und zwar so lange, bis die scharfen Kämme zwischen den Schmirgelrillen zerstört sind.

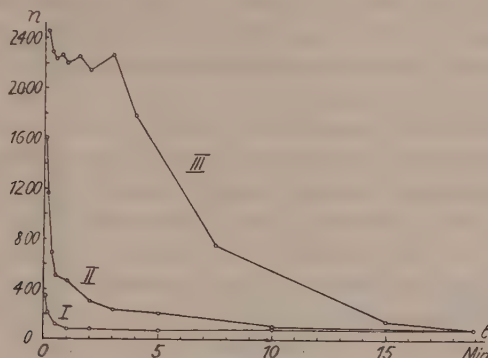


Fig. 5.

Alterung: 2 Pt-Kugeln ( $r = 0,55$  mm), Ra-Bestr.,  $V_0 = 2200$  V,  $V_b = 3000$  V.

I mit Polierstahl geglättet. II feinstes Schmirgelpapier (6/0).

III gröberes Schmirgelpapier (1/0).

Ein totales Ausbleiben des Alterungseffektes liess sich auch bei feinster Behandlung mit dem Polierstahl nicht erreichen; offenbar vermögen nur die Funken selbst den Elektroden den „letzten Schliff“ zu erteilen.

Diesem Verhalten Rechnung tragend, wurde bei der Alterung nicht nur auf eine bestimmte Funkenzahl — meistens 10—20 000 bei Verwendung feinsten Schmirgelpapiers — abgestellt, sondern es wurde in jedem Falle geprüft, ob einer konstanten Bestrahlung auch eine konstante mittlere Funkenzahl entsprach. Eine gleiche Probe empfiehlt sich nach mehrstündigem Nichtgebrauch der Elektroden. Bei Verwendung von Kathoden aus Elektrolyteisen ist nämlich schon nach wenigen Stunden, bei Platin nach einigen Tagen, ein kleiner Rückfall zu konstatieren, der nach Übergang weniger Funken wieder verschwindet.

Für die nachfolgenden Versuche wurden die Elektroden je-  
weilen mit feinstem Schmirgelpapier geschmirgelt, indem etwa  
2 mm breite Streifen Schmirgelpapier unter Verwendung zweier  
Pinzetten mehrmals gefaltet und auf der zu schmirgelnden Fläche

hin und her bewegt wurden. Unter dem Mikroskop waren dann ziemlich parallel verlaufende Schmirgelspuren festzustellen. Die so geschmirgelte Fläche wurde zuerst mit einem Leinenläppchen und dann mit Streifchen aus Filtrierpapier abgewischt.

Die drahtförmigen Elektroden wurden auf der Drehbank möglichst halbkugelig abgedreht, dann ähnlich wie die Platten behandelt. Die Schmirgelfurchen waren naturgemäss kreisförmig.

### *b) Druck und Gasstromstärke.*

Alle Messungen wurden unter Zugrundelegung eines vorgegebenen Funkenpotentials ausgeführt. Zu diesem Zwecke wurde bei der gewünschten Spannung der Elektrodenabstand so eingestellt, dass diese dem Funkenpotential entsprach.

Infolge der Abhängigkeit des Funkenpotentials vom Gasdruck (Paschens Gesetz!) können sich zwei zum gleichen Funkenpotential gehörende Elektrodenabstände je nach den atmosphärischen Druckverhältnissen um 1 bis höchstens 2 Hundertstel-Millimeter unterscheiden. Dem oft benutzten  $V_0$  von 2200 Volt entsprach bei der Anordnung Kugel—Platte und bei einem Luftdruck von 712 mm Hg ein Elektrodenabstand von 0,40 mm.

Infolge Reibung der strömenden Gase namentlich in den Glaswollepfropfen entstand im Elektrodengefäss ein konstanter Unterdruck von 1—2 mm Hg gegenüber der Aussenluft. Ein weiterer Einfluss der Gasstromstärke, die im Elektrodengefäss rund 1 mm pro Sekunde betrug, war nicht festzustellen.

Vor und nach jeder Messung wurde die Apparatur bei einem Unterdruck von 100 mm Hg auf ihre Dichtigkeit geprüft.

### *c) Feuchtigkeitsangaben.*

Die verschiedenen Feuchtigkeitsgrade der strömenden Gase wurden mit den bereits beschriebenen Düsen erzeugt und mit dem Haarhygrometer kontrolliert. Nach genügender Alterung dieses Instrumentes zeigte es jeweilen für eine bestimmte Düse mit höchstens  $\frac{1}{25}$  Abweichung wieder denselben Feuchtigkeitsgrad an und entsprach damit der von HOLBORN<sup>28)</sup> angegebenen Genauigkeit.

Die Eichung des Hygrometers wurde unter Beobachtung der verschiedenen Vorsichtsmassnahmen<sup>19)</sup> mit Hilfe wässriger Schwefelsäurelösungen in stehender Luft vorgenommen.

Wenn im folgenden die relative Feuchtigkeit mit 11% oder 40% angegeben wird, so bedeutet dies, dass bei der Messung bestimmte Düsen gebraucht wurden, für die sich mittels Hygrometer in stehender Luft Eichwerte von 11% bzw. 40% ergaben.  $\sigma = 100\%$  soll das gesättigte Gas kennzeichnen, wie es aus dem Be-

feuchtungsgefäß austrat, und  $\sigma = 0\%$  bedeutet jeweilen den unter den vorgelegenen Umständen bestmöglichen Trockenheitsgrad.

Die Lufttemperatur des Laboratoriums betrug gewöhnlich 18—19° C.

#### *d) Registrierung der Funken.*

Um für statistische Analysen auch den zeitlichen Abstand der mit dem Gesprächszähler registrierten Funken messen zu können, wurden die Zählerschläge auf mechanischem Wege auf eine Schreibkapillare übertragen und auf Morsestreifen notiert. Mit Hilfe einer gleichzeitig aufgenommenen Sekundenmarke liessen sich nachher die Zeitintervalle auf  $\frac{1}{100}$  Sekunde genau auswerten.

Um die Zuverlässigkeit des Zählkreises zu prüfen, wurden Probemessungen durchgeführt, bei denen die Zählerschläge wie soeben beschrieben, auf Papier markiert und gleichzeitig die Funkenfolgen photographisch (vgl. GREINACHER<sup>8)</sup>) registriert wurden. Der Vergleich der beiden unabhängig voneinander aufgenommenen Messungen ergab Übereinstimmung. Einzig dort, wo der zeitliche Abstand zweier Funken das Auflösungsvermögen des mechanischen Zählers unterschritt, waren auf dem Film zwei Bilder, auf dem Morsestreifen aber nur eine Marke vorhanden. In anderem Zusammenhang (§ 4, b) dienten diese Messungen dazu, die Korrekturformeln zu verifizieren.

### **§ 4. Statistik der Entladungen.**

#### *a) Grundsätzliches zur Statistik der Entladungen beim Funkenzähler.*

Den Anstoss zur Untersuchung der Funkenstatistik gab die Beobachtung von Nachwirkungseffekten bei den natürlichen Stössen. Es wurde von folgender Voraussetzung ausgegangen: Wenn alle oder doch zum mindesten ein nach Wahrscheinlichkeitsgesetzen bestimmter Teil der in das Zählvolumen eintretenden ionisierenden Teilchen je eine und nur eine Funkenentladung auslösen, dann muss die entstehende Funkenreihe dieselbe statistische Verteilung zeigen, wie die vom Strahler in das Zählvolumen geandten Korpuskeln oder Photonen. Arbeitet also der Funkenzähler nachwirkungsfrei, d. h. ist ein erster Funke ohne ursächliche Wirkung auf den nachfolgenden Funken, dann muss z. B. die reine Zufälligkeit des radioaktiven Zerfalls mit dem Funkenzähler zu erkennen sein, ohne dass man mit diesem Nachweis über die Frage entscheiden könnte, ob jede ionisierende Partikel einen Funken zur Folge hat oder ob ihr nur eine gewisse Wahrscheinlichkeit hierfür zukommt.



Zur mathematischen Behandlung dieses Problems lässt sich in ähnlicher Weise vorgehen wie bei den vorliegenden Arbeiten über den Entladeverzug, wo unter andern Bedingungen ähnliche Aufgaben gelöst wurden (ZUBER<sup>26</sup>)<sup>27</sup>), BATH<sup>2</sup>), STRIGEL<sup>20</sup>) u. a.).

Für die Verteilungsfunktion einer rein zufällig verteilten Ereignisfolge gilt im Anschluss an eine Betrachtung von M. v. LAUE<sup>16</sup>) in Übertragung auf den vorliegenden Fall der Ausdruck:

$$n_t = n_0 \cdot e^{-\bar{n} \cdot t}. \quad (1)$$

Es bedeuten:  $n_0$  die Anzahl Funken während der Zeit  $t_0$ ,  $n_t$  diejenige Zahl von Funken, die vom vorhergehenden Funken einen grösseren zeitlichen Abstand haben als  $t$ ,  $\bar{n}$  die mittlere Funkenzahl pro Zeiteinheit, d. h.  $\bar{n} = \frac{n_0}{t_0}$ . Der reziproke Wert davon, nämlich  $\frac{1}{\bar{n}} = \frac{t_0}{n_0}$ , ist die mittlere Verzögerungszeit eines Funkens, wenn man den Funkenzähler vom Gesichtspunkte des Entladeverzugs aus betrachtet.

War nun eine auf Papier oder Film registrierte Funkenfolge auf statistische Reinheit zu untersuchen, so wurden die Abstände zwischen den aufeinanderfolgenden Funken gemessen (§ 3, d), gruppiert und mit der theoretisch zu erwartenden Verteilung verglichen.

Eine u. a. von KUTZNER<sup>15</sup>) benutzte und auch in den vorliegenden Untersuchungen gelegentlich herangezogene Formulierung der statistischen Reinheit stellt die BATEMANSche<sup>1</sup>) Formel dar, für die die Messzeit  $t_0$  in eine passende Zahl  $s$  von gleich langen Zeitintervallen unterteilt und deren Belegung mit Funken ausgezählt wird. Ist die Verteilung der Funken rein zufällig, so ergibt sich nach BATEMAN die erwartungsmässige Zahl der mit  $z$ -Funken besetzten Intervalle als:

$$f(z) = s \cdot \frac{m^z \cdot e^{-m}}{z!}. \quad (2)$$

Die Konstante  $m$  bedeutet die mittlere Funkenzahl pro Intervall, d. h.  $m = \frac{n_0}{s}$ .

Hat man zu beurteilen, ob die Abweichungen der Messergebnisse von der theoretisch zu erwartenden Verteilung nach BATEMAN zufälliger oder systematischer Natur sind, so bietet der Divergenzkoeffizient von LEXIS (vgl. <sup>15</sup>)) ein Kriterium hierfür.

### *b) Auflösevermögen und Korrektur der Messergebnisse.*

Es stellte sich die Aufgabe, aus der mit dem Gesprächszähler registrierten Zahl von Funken (aus den gemessenen Ereignissen) die Zahl der wirklich in das Zählvolumen eingetretenen und zur

Funkenauslösung führenden Teilchen (die wirklichen Ereignisse) zu berechnen. Dieses Problem ist im Zusammenhang mit andern Zählmethoden von verschiedenen Seiten abgeklärt worden, und es sei hier auf eine Arbeit von MAIER-LEIBNITZ<sup>18)</sup> verwiesen, in der sich weitere Literaturangaben finden.

Bei der vorliegenden Apparatur können an drei Stellen Zählverluste eintreten, da sowohl Funkenstrecke, als Thyatron als das mechanische Zählwerk ein beschränktes Auflösungsvermögen besitzen. Bekanntlich<sup>18) 24)</sup> gibt es zwei Grenzfälle von Zählvermögen, solche, bei denen die Apparatur für eine gewisse Zeit  $\tau$  nach dem letzten registrierten Ereignis gesperrt ist und weitere Ereignisse innerhalb der Zeit  $\tau$  keinen Einfluss auf die Apparatur haben, und solche, bei denen Ereignisse innerhalb  $\tau$  die Sperrzeit immer wieder verlängern, so dass bei genügend grosser Frequenz der wirklichen Ereignisse die Apparatur fast dauernd blockiert ist und nichts mehr gezählt wird.

Im vorliegenden Falle sind Funkenstrecke und Thyatron als Typen der ersten Art zu betrachten, während der Gesprächszähler zur zweiten Art gehört. Diese Kombination der beiden Arten müsste zu verwickelten Korrekturrechnungen führen, wäre nicht folgende Vereinfachung möglich: Durch geeignete Wahl des Kondensators  $C_2$  (Fig. 1) konnte das Auflösungsvermögen des Thyatrons demjenigen des Zählwerkes so angeglichen werden, dass jedes Zünden der Röhre auch den Zähler zum einwandfreien Ansprechen brachte. Somit sind Gesprächszähler und Thyatron zusammen als ein einziges System der 1. Art zu betrachten, und da das Auflösungsvermögen der Funkenstrecke meistens um eine ganze Grössenordnung höher war als dasjenige des Zählers, erwies sich dessen alleinige Berücksichtigung für die Korrekturen als genau genug.

Die Auflöszeit der Funkenstrecke wurde photographisch bei verschiedenen Überspannungen bestimmt, indem der kleinste Abstand in einer hinreichend langen Funkenfolge ermittelt und ausgewertet wurde. Ein Vergleich mit den Werten, wie sie sich auf Grund der von GREINACHER<sup>8)</sup> angegebenen Formel berechnen lassen, ergab Übereinstimmung innerhalb der Messgenauigkeit der sogenannten Abreißspannung (vgl. auch STUBER<sup>22)</sup>). Die Trennschärfe des Gesprächszählers liess sich aus der maximal registrierbaren Funkenzahl<sup>23)</sup> oder in analoger Weise zur vorigen Methode aus den kleinsten Abständen auf den Morsestreifen bestimmen. Die Trennzeiten der einzelnen Zählwerke lagen zwischen 0,03 und 0,04 Sekunden.

Die Korrekturen wurden dann nach der bekannten<sup>18)</sup>, hier etwas umgeformten Beziehung

$$n = \frac{n_0 \cdot t_0}{t_0 - n_0 \cdot \tau} \quad (3)$$

vorgenommen, worin  $\tau$  das Auflösungsvermögen des Gesprächszählers und  $n$  in erster Annäherung die wahrscheinliche Zahl der zur Funkenauslösung fähigen Ionisationsakte pro Minute bedeuten. Der Korrekturbetrag  $n \cdot t_0 - n_0$  soll also nicht nur die vom Zählwerk nicht erfassten Funken enthalten, sondern auch die wegen der beschränkten Trennzeit der Funkenstrecke nicht zustande gekommenen Funken.

### § 5. Grundsätzliches über Zählkurve und Zählbereich beim Funkenzähler.

Wie beim Geiger-Müllerschen Zählrohr<sup>4)11)25)</sup> lässt sich auch beim Funkenzähler eine Zählcharakteristik oder Zählkurve ermitteln, die in gleicher Weise die Abhängigkeit der mittleren Funkenzahl pro Minute von der Betriebsspannung zum Ausdruck bringt (vgl. auch STUBER<sup>22)</sup>).

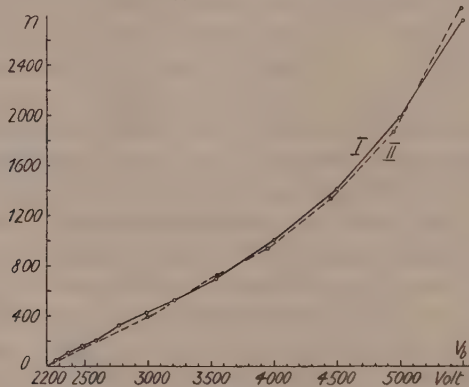


Fig. 6.

Zählkurven für Pt-Kugel ( $r = 0,55$  mm) und Pt-Platte. Ra-Bestr.

$V_0 = 2200$  V,  $\sigma = 11\%$ .

I: 7. 1. 42.      II: 12. 5. 42.

Fig. 6 zeigt Zählkurven für eine Funkenstrecke mit einer Pt-Platte als Kathode und einer Pt-Kugel als Anode. Die Kurven beginnen bei einer untern kritischen Spannung, welche sich bei hinreichender Bestrahlungsintensität sehr genau bestimmen lässt, entweder als grösste Spannung, bei der die Funkenstrecke gerade noch nicht zündet, oder als kleinste Spannung, bei der die Funkenstrecke gerade noch anspricht. Die Ermittlung erfolgte gewöhnlich mit dem Ra-Präparat von 0,5 mg im Abstände 5 cm von der Funkenstrecke.

Es entspricht dies dem üblichen Verfahren, um das Funkenpotential zu bestimmen. Diese untere Grenze, die in frühern Arbeiten über den Funkenzähler (GREINACHER, STUBER l. c.) als

Minimalspannung bezeichnet wurde, soll dementsprechend in der Folge als Funkenpotential angesprochen werden. Diese Umstellung der Bezeichnungen rechtfertigt sich auch durch die Übereinstimmung der Werte mit den in der Literatur (vgl. etwa <sup>29)</sup>) angegebenen Werten über Durchbruchsspannungen und Funkenpotentiale.

Damit erfährt auch die Darstellung des Zählvorganges eine Modifikation. Nach der bisherigen Auffassung sollte die Besonderheit der Elektroden eine Erhöhung des Funkenpotentials bewirken, die dann durch Bestrahlung aufgehoben wurde. Nach dem hier Vorgebrachten besteht der Zählvorgang darin, dass hier eine besonders hohe Funkenverzögerung durch ein einzelnes ionisierendes Teilchen aufgehoben wird.

Die Bestimmung des Funkenpotentials erforderte einzig bei schwacher Bestrahlung viel Zeit und Geduld, da in diesem Falle die Funkenfrequenz in der Nähe des Funkenpotentials sehr klein ist.

Eine Abhängigkeit des Funkenpotentials von der Bestrahlungsintensität konnte bei gleichbleibender Natur der Strahlung innerhalb der zur Verfügung stehenden Intensitäten nicht beobachtet werden, hingegen bestätigte sich bei Verwendung von  $\alpha$ -Strahlen die bekannte <sup>5-9)</sup> <sup>22)</sup> Verschiebung der untern Grenze um 100 bis 150 Volt nach unten.

Lässt man nun eine Bestrahlung von geeigneter Intensität auf die Funkenstrecke einwirken, so beobachtet man (Fig. 6) eine kontinuierliche Zunahme der Funkenfrequenz mit wachsender Spannung. Nach einem annähernd linearen Wachstum der Kurven über einen Spannungsbereich von etwa 1000 Volt erfolgt ein immer steiler werdender Anstieg, der von einer starken Zunahme der natürlichen Entladungen herrührt und von dem in Fig. 6 nur der Anfang zu erkennen ist. Unter diesen natürlichen Stössen oder spontanen Funken sind äusserlich von künstlich ausgelösten nicht zu unterscheidende Entladungen zu verstehen, wie sie sich von selbst, d. h. ohne besondere Bestrahlung ergeben.

Die spontanen Stösse setzen nicht etwa bei einer bestimmten Überspannung ein, sondern ihre Zahl nimmt, wie die in § 7 wiedergegebenen Messungen zeigen, kontinuierlich mit der Überspannung zu, und zwar erscheint nach bisheriger Erfahrung die kleinste Spannung, bei der natürliche Stösse gerade noch auftreten, wenn vielleicht auch in Abständen von vielen Stunden, zusammenzufallen mit dem für Radiumbestrahlung gültigen Funkenpotential. Unterhalb dieser Spannung, z. B. im Bereich, wo nur  $\alpha$ -Strahlen gezählt werden, konnte man natürliche Funken nie beobachten.

Der Zählbereich kann also gegen oben nicht scharf begrenzt werden, und da er sich als relative Grösse darstellt, ist er etwa



wie folgt zu definieren: Er ist das Spannungsintervall, in dem die natürlichen Stösse gegenüber den künstlich ausgelösten sehr selten sind und sämtliche Funkenübergänge nachwirkungsfrei erfolgen. Die Bedingung des nachwirkungsfreien Übergangs tritt noch hinzu, weil es Gase gibt, in denen natürliche Stösse u. U. sehr selten sind, sobald aber eine einzige Entladung eintritt, so hat diese ganze Serien von weitem Funken zur Folge.

Der Umstand, dass das Zählvolumen des Funkenzählers mit wachsender Spannung zunimmt, verlangt bekanntlich beim Funkenzähler eine gute Konstanz der Betriebsspannung. Bestrebungen, auch beim Funkenzähler eine Charakteristik vom Typus der Zählrohrkurven zu erreichen, führten, ausgehend von der Idee, nur die zentralen Teile des Zählvolumens zur Zählung zu benutzen, in einem speziellen Falle zum Erfolg (§ 11).

Trotz der zahlreichen die Funkenentladung bestimmenden Parameter sind die Zählkurven unter sauberen Versuchsbedingungen gut reproduzierbar. So stellen die beiden Zählkurven der Fig. 6 Messungen dar, die zeitlich 4 Monate auseinanderliegen. Beide Elektroden waren in der Zwischenzeit zu zahlreichen andern Versuchen gebraucht und oft neu geschmirgelt worden. Bei der Messung vom 12. Mai 1942 wurde speziell darauf geachtet, dass auch das Ra- Präparat genau in die gleiche Lage in bezug auf die Funkenstrecke kam.

## § 6. Nachweis von Funkenübergängen mit rein statistischer Verteilung.

In den folgenden Versuchen wurden die zeitlichen Abstände zwischen den einzelnen Funken ermittelt, nach geeigneten Grössenklassen gruppiert und nach Massgabe der Formel (1) dargestellt, in der Weise, dass auf der Abszisse die Zeit aufgetragen wurde und auf der logarithmisch geteilten Ordinate die auf 100 bezogene Zahl von Funken, die einen grössern zeitlichen Abstand hatten, als dem zugehörigen Abszissenwert entspricht. Formel (1) stellt unter diesen Verhältnissen eine Gerade dar, und die aus der Messung erhaltene Punktreihe muss unter Voraussetzung einer rein zufälligen Verteilung der Funken dieser Geraden umso näher kommen, je grösser die Zahl der ausgewerteten Funken ist. Diese „Idealgerade“ lässt sich natürlich in jedem Einzelfall auf Grund von  $n_0$ ,  $t_0$  und  $\tau$  berechnen und zur Beurteilung der empirisch gelieferten Werte heranziehen. Der zur Ordinate 100% gehörende Abszissenwert entspricht aus trivialen Gründen dem Auflösungsvermögen.

In Fig. 7 findet sich ein Versuch dargestellt, bei dem 1000 Funken, ausgelöst durch  $\alpha$ -Teilchen, verwertet wurden. Man beobachtet, wie die Messpunkte mit der errechneten Idealgeraden gut über-

einstimmen, was auf die rein zufällige Verteilung der Funken schliessen lässt. Bei diesem Versuche waren die Bedingungen noch insofern günstig, als die  $\alpha$ -Teilchen der Funkenstrecke durch einen Kanal in der Kathode zugeführt wurden (§ 11) und dass damit in

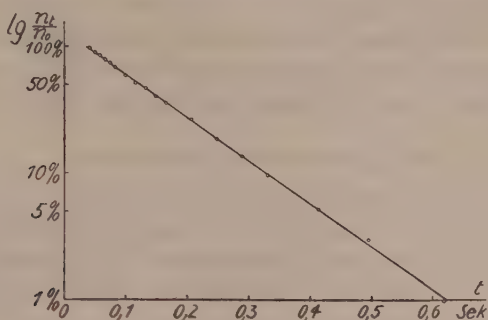


Fig. 7.

Verteilung von  $\alpha$ -Teilchen. Pt-Kugel ( $r = 0,55$  mm), durchbohrte Messingplatte, Po-Präparat,  $V_0 = 2240$  V,  $V_b = 2600$  V,  $\sigma = 65\%$ ,  $n_0 = 1000$  Fk,  $t_0 = 164,1''$ .

einem spannungsunempfindlichen Teil der Zählkurve gearbeitet werden konnte.

Die beiden folgenden Versuche (Fig. 8), die je 500 Funken umfassen, wurden mit der einen Funkenstrecke des Kugelgefässes

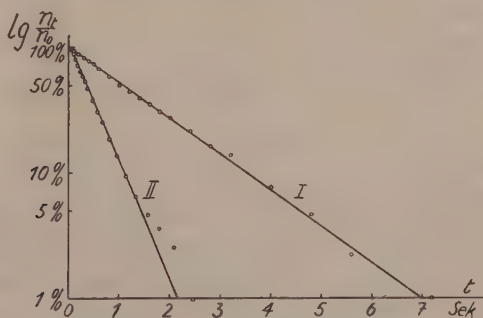


Fig. 8.

Funkenverteilung für 2 Pt-Kugeln ( $r = 0,8$  mm), Ra-Bestr.,  $V_0 = 2550$  V.

I:  $V_b = 2810$  Volt,  $n_0 = 500$  Fk,  $t_0 = 13'3''$ .

II:  $V_b = 6000$  Volt,  $n_0 = 500$  Fk,  $t_0 = 4'10''$ .

durchgeführt. Kurve I, einer Messung bei 260 Volt Überspannung entsprechend, verläuft relativ gut im Sinne der Idealgeraden. Abgesehen von den grössern Zeitintervallen, bei denen sich schon wegen ihrer geringern Häufigkeit der Zufall stärker bemerkbar macht, erfüllt auch die Kurve II, der die beachtenswerte Über-

spannung von 3450 Volt entspricht, die Idealgerade noch recht gut, d. h.: der zähltaugliche Spannungsbereich dieser Funkenstrecke hat die bemerkenswerte Ausdehnung von über 3000 Volt, oder: bei über 3000 Volt Überspannung sind noch ganz beträchtliche Funkenverzögerungen möglich.

Allen vier Versuchen (Fig. 6 und 7) ist gemeinsam, dass der Nulleffekt, der, wie später gezeigt wird, meist keine rein zufällige Verteilung besitzt, seiner Kleinheit wegen zu vernachlässigen ist.

### § 7. Der Einfluss des Wasserdampfes.

Der Einfluss des Wasserdampfes lässt sich schon durch einen einfachen Handversuch dartun. Bläst man durch ein Glasröhrchen Atemluft oder mit Hilfe eines Gebläses feuchte Luft in kleinen Dosen gegen die Funkenstrecke zwischen einer kugeligen Platinanode und einer Messingplatten-Kathode, in der eine geeignete Überspannung einen Nulleffekt von einigen Dutzend Funken pro Minute aufrechterhält, so bemerkt man zuerst eine auffällige Abnahme der Entladungen. Bei weiterm Blasen, insbesondere gegen die Kathode, tritt plötzlich eine starke Zunahme der Entladungen ein, die sich in völliger Regelmässigkeit folgen (Kippentladungen!).

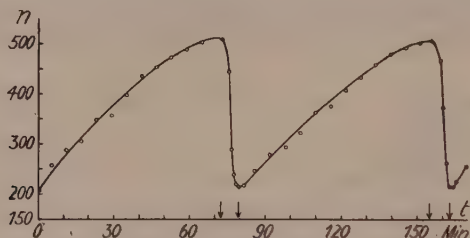


Fig. 9.

Variation der Funkenfrequenz mit der rel. Feuchtigkeit. Pt-Kugel ( $r = 0,55$  mm), Oerstitstahl-Platte, Ra-Bestr.,  $V_0 = 2200$  V,  $V_b = 3000$  V.

Mit blossen Auge lässt sich beobachten, dass diese Erscheinung mit der Bildung einer Wasserhaut auf der Kathode zusammenhängt. Die Farbe des Funkenlichts deutet darauf hin, dass nun die Überschläge zwischen Platin und Wasser oder zwischen Wasser und Wasser stattfinden. Mit dem Einstellen des Blasens und dem allmählichen Verschwinden des Wasserbeschlages hört auch das Schnellfeuer auf, und nach kurzer Stille stellt sich wieder die ursprüngliche mittlere Funkenfrequenz ein.

Eingehende Versuche mit feuchten und trockenen Gasen wurden mit der in § 2, c beschriebenen Apparatur durchgeführt. Aus Fig. 9 ist ersichtlich, wie sich einer Funkenfrequenz von ca.

200 Funken pro Minute, die der Bestrahlung durch Ra entspricht, eine mit der Feuchtigkeit stark veränderliche Zahl von natürlichen Stößen überlagert, wenn der Luftstrom abwechselungsweise auf dem trockenen und feuchten Weg ins Elektrodengefäß geleitet wird. Die Pfeile geben den Zeitpunkt des Wechsels an. Die Erscheinung kann, wie Fig. 9 zeigt, zum mindesten qualitativ reproduziert werden, wobei jeweils die Trocknung, die 10mal mehr Zeit beanspruchte als die Befeuchtung, in 70 Minuten von einer relativen Feuchtigkeit von ca. 80% zu einer solchen von schätzungsweise 2% führte.

Der Grund, wieso diese Abhängigkeit des Nulleffektes vom Wasserdampfgehalt der Luft nicht früher beobachtet wurde, ist darin zu suchen, dass Feuchtigkeitsänderungen, wie sie in Zimmerluft vorkommen, keinen merklichen Einfluss auf die Zahl der natür-

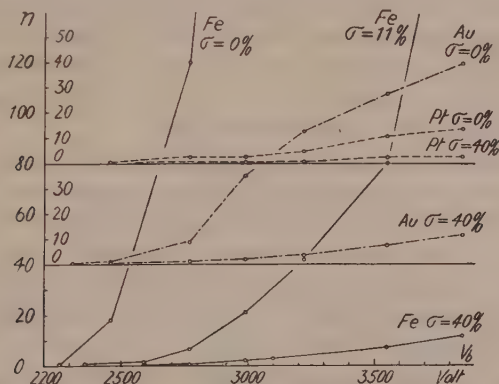


Fig. 10.

Zählkurven der natürlichen Stösse für Fe-, Au- und Pt-Plattenkathode in strömender trockener und feuchter Luft. Pt-Anode ( $r = 0,55$  mm),  $V_0 = 2200$  V.

lichen Stösse ausüben. Hingegen darf die Möglichkeit der Wasserdampfkondensation auf den Elektroden nicht ausser acht gelassen werden, besonders in abgeschlossenen Gefässen, wo die Feuchtigkeitsverhältnisse nicht hinreichend bekannt sind.

Während Messing und Elektrolyteisen als Kathodenmaterial in bezug auf die natürlichen Stösse dieselbe starke Abhängigkeit vom Wasserdampfgehalt der Luft zeigten wie z. B. Oerstittstahl, war diese bei den Edelmetallen Gold und Platin viel kleiner.

Nach zahlreichen Misserfolgen, die erst verschwanden und sich erklärten, nachdem die Alterungseffekte (§ 3, a) genügend bekannt waren, ergab sich für Gold und Platin das in Fig. 10 anhand der Zählkurven für natürliche Stösse dargestellte Verhalten in trockener



und feuchter Luft. Zum Vergleiche dienen die entsprechenden Ergebnisse bei Elektrolyteisen, für das noch eine Kurve mit einem mittleren Feuchtigkeitsgrad von 11% eingezeichnet ist. Die mit  $\sigma=0\%$  bezeichneten Zählkurven entsprechen einem Trockenheitsgrade, wie er sich nach zweistündigem Durchleiten des trockenen Luftstromes durch das Elektrodengefäss einstellte. Der bessern Übersicht wegen sind in Fig. 10 die Zählkurven für Gold und Platin vertikal verschoben. Die drei plattenförmigen Kathoden (Fe, Au, Pt) wurden mit dem gleichen Pt-Stab ( $r=0,55$  mm) als Anode verwendet. Eine Veränderung der untern Grenze mit der relativen Feuchtigkeit der Luft konnte innerhalb der Messgenauigkeit nicht festgestellt werden. Trotzdem die natürlichen Entladungen gewöhnlich nicht in rein zufälliger Verteilung erfolgten, konnten durch Mittelwertbildung über längere Zeiten — bei kleinen Frequenzen ein bis mehrere Stunden — reproduzierbare Werte der mittlern Funkenfrequenz erhalten werden. Man bemerkt, dass Gold einen kleinen und Platin einen sehr kleinen Feuchtigkeitseffekt aufweist im Verhältnis zu Eisen. Ausserdem fällt bei Platin die vergleichsweise geringe Zahl von natürlichen Stössen auf.

Der Gedanke lag nahe, dass sich bei Platin durch eine extrem starke Trocknung ein grösserer Effekt erreichen liesse. Diese Frage wurde mit Hilfe des Kugelgefässes geprüft. Nachdem Gefäss und Elektroden in destilliertem Wasser ausgekocht und getrocknet waren, wurde die grosse Kugel mit  $P_2O_5$  beschickt und das Gefäss beim Füllrohr abgeschmolzen. Während einer Woche täglich vorgenommene Messungen ergaben keine Zunahme der natürlichen Stösse, deren mittlere Frequenz infolge Kugelgestalt der Elektroden (§ 10, b) ohnehin noch kleiner war als im vorhergehenden Versuch mit Plattenkathoden.

Nach einer bei anderer Gelegenheit bewährten Methode (GREINACHER<sup>10</sup>) wurde nun durch Ausheizen des Gefässes eine schärfere Trocknung herbeigeführt. Die eine Hälfte des Kugelgefässes wurde in einen rohrförmigen Ofen eingeschlossen und während ein bis zwei Stunden auf ca.  $400^\circ$  C erhitzt. Die erwarteten Druckänderungen liessen sich an der frei bleibenden Elektrodenkugel durch Messung des Funkenpotentials verfolgen. Nach Wiederabkühlung ausgeführte Messungen ergaben ein negatives Resultat: keine nennenswerte Vergrösserung des Nulleffektes bei Platin in scharf getrockneter Luft.

Schliesslich wurde noch das Ausglühen der Pt-Kugeln versucht, indem sie mittels Umschalter mit den Sekundärklemmen eines Funkeninduktoriums verbunden wurden, bis die Kügelchen zum Glühen kamen. Bei plötzlichem Umschalten auf die normale Be-

triebsspannung setzte der Zähler mit der grösstmöglichen Zählfrequenz ein, die dann aber mit der rasch abnehmenden Temperatur der Elektroden wieder auf kleinere Werte und bald auf die Anfangsfrequenz zurückging.

In Fig. 11 sind zwei derartige Versuche ausgewertet, der eine mit, der andere ohne zusätzliche Strahlungskomponente. Da sich die Pt-Kügelchen bei Beginn der Messung sehr rasch unter die Glühtemperatur abkühlten, kann die 5—10 Sekunden andauernde hohe Funkenfolge kaum allein auf Glühelktronenemission zurückgeführt werden. Vielmehr scheint hier wirklich eine wasserfreie Oberfläche vorzuliegen, die sich aber sehr bald wieder mit den

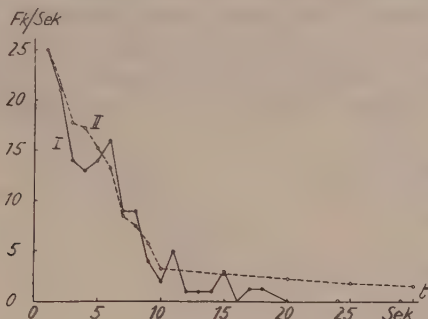


Fig. 11.

Abnahme der natürlichen Stösse mit der Temperatur nach dem Ausglühen.  
Pt-Kugeln ( $r = 0,8$  mm).  $V_0 = 2530$  V,  $V_b = 3000$  V.

I: ohne Bestr. II: mit Ra-Bestr. aus 4 Messungen gemittelt.

für das Eintreten der Funkenverzögerung ausreichenden Spuren von Wasser bedeckt.

Ob sich der Wasserdampf auch noch durch seine Wirkung als elektronegativer Dampf (vgl. STRIGEL<sup>20</sup>) und WEBER<sup>24</sup>) an der Funkenverzögerung beteiligt, d. h. durch „Elektroneneinfang“ Beweglichkeit und Ionisationsvermögen der die Kathode verlassenden Elektronen vermindert, ist für den vorliegenden Fall noch nicht abgeklärt.

### § 8. Statistik des Nulleffektes.

Durch Variation von Feuchtigkeit und Betriebsspannung lässt sich die gewünschte Häufigkeit der natürlichen Stösse einigermaßen vorgeben. Bei einiger Übung erkennt man sofort, sei es durch Lupenbetrachtung der überspringenden Fünkchen oder gehörmässig an den Schlägen des mechanischen Zählers, wenn die spontanen Stösse nicht in einer rein zufälligen Verteilung ausgelöst werden. Sie erfolgen mehr gruppenweise als einzeln, und man hat

den Eindruck, als begünstigt oft ein erster Funke die Auslösung weiterer Funken.

Diese Vermutung wird gestützt durch die Ergebnisse der statistischen Untersuchung, die vorerst mit Hilfe der BATEMANSchen Formel (2) durchgeführt wurde. In Fig. 12 ist eine Idealkurve berechnet, der eine mittlere Belegung von genau 2 Funken pro Intervall entspricht. Der analytische Ausdruck lautet demnach:

$$f(z) = 100 \cdot \frac{2^z \cdot e^{-2}}{z!}.$$

Mit ihr verglichen werden die zwei empirisch aus je 1000 Funken gewonnenen Kurven einer nur aus spontanen Stössen bestehenden Funkenfolge (Kurve I) und einer unter günstigen Zählbedingungen durch Ra-Bestrahlung erzeugten Funkenfolge (Kurve II), in der natürliche Stösse nicht oder nur zu einem verschwindenden Teil vorkommen. Während Kurve II mit der Idealkurve recht gut

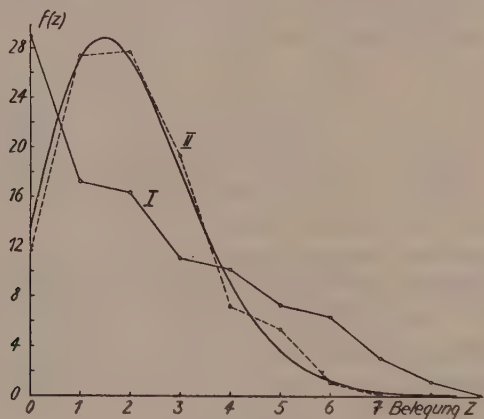


Fig. 12.

Verteilung der natürl. und künstl. Stösse.

I = Spontane Funken, Pt-Stab, El. Eisen-Platte,  $V_0 = 2200$  V,  $V_b = 3000$  V,  $\sigma = 0\%$ .

II = Künstlich ausgelöste Funken. 2 Pt-Kugeln. Ra-Bestr.,  $V_0 = 2530$  V,  $V_b = 2800$  V.

übereinstimmt im Hinblick darauf, dass nur 1000 Funken berücksichtigt wurden, weicht Kurve I von der Idealkurve grundsätzlich ab. Hier fällt auf, dass die Intervalle ohne Belegung und diejenigen mit starker Belegung zu häufig vorkommen und solche mit einer mittleren Belegung von 1—3 Funken zu selten sind. Dieser Sachverhalt spricht für Nachwirkung der Entladungen. Einem ersten Funken kommt offenbar grosse Wahrscheinlichkeit zu, Ursache eines zweiten und dritten Funkens zu sein, die dem ersten in geringem Zeitabstand folgen.

Dasselbe Verhalten muss natürlich, wie aus Fig. 13 ersichtlich, auch in der Auswertung nach der v. LAUE'schen Formel (1) zum Ausdruck kommen, wo die gleiche Messreihe mit nur natürlichen Stößen wiederum als Kurve I dargestellt ist. Fasst man diese Kurve ins Auge, so ergibt sich im Vergleich mit der Idealgeraden gewissermassen in reziprokem Sinn zu vorhin: Zuviel kleine und grosse aber zu wenig mittlere Verzögerungszeiten.

Fig. 13 zeigt das statistische Verhalten der Funkenentladungen auch für den Fall einer zusätzlichen Radiumbestrahlung bei verschiedenen Feuchtigkeitsgraden. Da mit zunehmender Feuchtigkeit

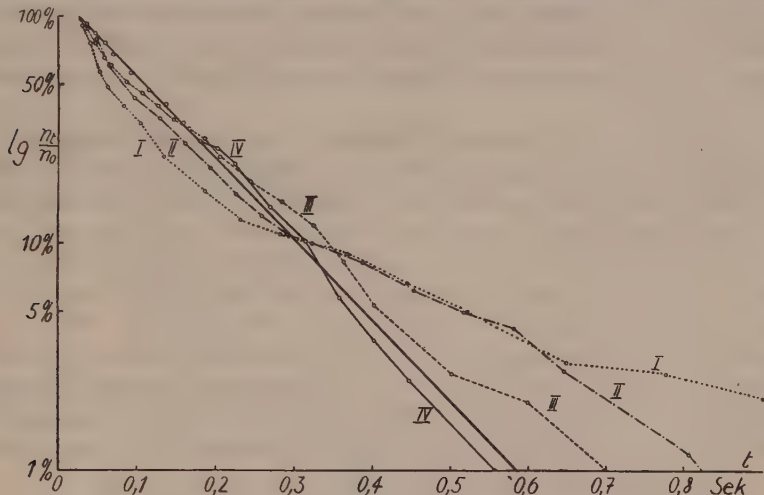


Fig. 13.

Einfluss der natürlichen Stösse auf die Statistik der Entladungen.

Pt-Stab ( $r = 0,55$  mm), El. Eisen-Platte,  $V_0 = 2200$  V,  $V_b = 3000$  V.

I  $\sigma = 0\%$  ohne Bestr. II  $\sigma = 0\%$  Ra-Bestr., III  $\sigma = 11\%$  Ra-Bestr.,

IV  $\sigma = 40\%$  Ra-Bestr.

(Messreihe II—III—IV) die Zahl der natürlichen Funkenübergänge abnimmt, bzw. praktisch  $= 0$  wird, nähert sich die Statistik schliesslich derjenigen der künstlich durch Ra-Bestrahlung ausgelösten Funken. Um einen guten Vergleich zu ermöglichen, sind alle Ergebnisse so transformiert, dass ihnen dieselbe Idealgerade entspricht. Man erkennt so ohne weiteres, dass die Annäherung an diese um so besser wird, je kleiner die Zahl der spontanen Stösse ist.

Aus diesem Versuch ergibt sich, dass durch genügende Luftfeuchtigkeit die Zahl der natürlichen Stösse und damit der Nachwirkungseffekt weitgehend herabgesetzt werden kann. Es wäre aber verfehlt, etwa eine nahezu gesättigte Luft als optimale Zählbedingung zu betrachten, da solche Luft zu Kondensationserschei-



nungen auf der Kathode und zum Verschwinden jeglicher Zählwirkung führen kann. Als relativ günstig zeigen sich die Feuchtigkeitsverhältnisse normaler Zimmerluft.

Solange die spontanen Funken, wie sie infolge der radioaktiven Strahlung der Umgebung (Erdboden, Mauer, Luft) und der Ultrastrahlung auftreten, nur eine geringe Häufigkeit aufweisen — vielleicht einige Funken pro Stunde — folgen sie sich in einer mehr oder weniger zufälligen Verteilung und können, wenn nötig, in Rechnung gesetzt werden. Sobald aber die natürlichen Stösse die vorgenannte Häufigkeit überschreiten, so zeigen sie keine rein statistische Verteilung mehr und lassen sich bei quantitativen Messungen nicht in Rechnung setzen, da unter solchen Umständen auch jeder durch vorgenommene Bestrahlung ausgelöste Funken weitere Funken auslöst.

Dass sich die spontanen Stösse zu den künstlich ausgelösten nicht additiv verhalten, geht auch aus folgendem Versuche hervor: Im Elektrodengefäss wurde bei derselben Betriebsspannung die Funkenfrequenz der natürlichen Stösse einmal bei feuchter Luft ( $Z_f$ ) und einmal bei trockener Luft ( $Z_t$ ) ermittelt. Wurde nun die Funkenstrecke bestrahlt, so ergab sich die Frequenz  $Z_f$  für feuchte und die Frequenz  $Z_t$  für trockene Luft. Während  $Z_f$  unter den gewählten Bedingungen praktisch = 0 gefunden wurde und somit anzunehmen war, dass  $Z_f$  nur aus künstlichen Funken besteht, setzt sich  $Z_t$  aus künstlichen *und* natürlichen Stössen zusammen. Bei additivem Verhalten der natürlichen Stösse erhielte man somit:

$$\bar{Z}_t = \bar{Z}_f + Z_t. \text{ Stets fand man aber: } \bar{Z}_t > \bar{Z}_f + Z_t,$$

d. h. die beim Zusammenwirken von „natürlichen“ und künstlichen Ursachen sich ergebende Funkenzahl ist grösser als die aus den beiden Komponenten gebildete Summe.

Es zeigte sich ferner, dass mit zunehmender Zahl der natürlichen Stösse die Nachwirkung um so grösser und die Zähltauglichkeit um so mehr herabgesetzt wird.

### § 9. Die Funkenzählung in Stickstoff, Wasserstoff, Sauerstoff und Kohlendioxyd.

Nach der Ähnlichkeit ihrer Zähleigenschaften lassen sich die vier Gase in zwei Gruppen ordnen: Stickstoff-Wasserstoff und Sauerstoff-Kohlendioxyd.

#### a) Stickstoff und Wasserstoff.

Bei starker Trocknung dieser aus Stahlflaschen entnommenen Gase erwies sich Funkenzählung als unmöglich, da in beiden Gasen

ausgesprochene Nachwirkung und serienmässiger Funkenübergang zu beobachten war, wobei die Zahl der sich als Serien abzeichnenden Funken mit der Überspannung immer grösser wurde, bis schliesslich eine kontinuierliche Funkenfolge entstand.

Als besondere Eigenschaft des trockenen Stickstoffs fiel auf, dass seine Serien und Dauerfolgen einer ausgesprochenen Zündung durch einen Anfangsfunken bedurften, der durch Nachwirkung den zweiten usw. nach sich zog. Beispielsweise liessen sich bei einer Überspannung von 500 Volt Funkenverzögerungen von einigen Minuten Dauer beobachten; sobald man aber der Funkenstrecke für kurze Zeit ein Ra-Präparat näherte, setzte ein Schnellfeuer ein, das erst aufhörte, wenn man die Spannung abschaltete. Wurde die Spannung nach einigen Zehntelsekunden neu angelegt, so herrschte wieder „Funkstille“.

Es war von Interesse, nachzuprüfen, ob sich auch bei Stickstoff ein Einfluss von Wasserdampf bemerkbar macht. Schon der erste orientierende Versuch mit langsam zunehmender Feuchtigkeit

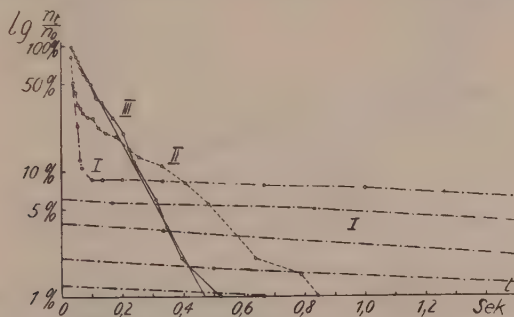


Fig. 14.

Einfluss der Feuchtigkeit auf die statistische Verteilung in Stickstoff.

Pt-Kugel ( $r = 0,55$  mm), El. Eisen-Platte, Ra-Bestr.

	$\sigma$	$n_0$	$t_0$
I	0%	1000 Fk.	96''
II	12%	210 Fk.	120''
III	65%	102 Fk.	120''

keit des Stickstoffs liess erkennen, was Fig. 14 für drei ausgewählte Feuchtigkeitsgrade zum Ausdruck bringt: zunehmender Wasserdampfgehalt des Stickstoffs lässt den Nachwirkungseffekt kleiner werden. In gesättigtem Stickstoff bleibt die Nachwirkung aus, und die Funkenübergänge folgen sich in rein statistischer Verteilung. Sämtliche Messungen wurden wiederum so transformiert, dass ihnen die nämliche Idealgerade zukam. Kurve III (feuchter Stickstoff) spricht für nachwirkungsfreie Funkenentladungen; ihre relativ grossen Schwankungen sind dem Umstand zuzuschreiben,

dass nur 100 Funken ausgewertet wurden. Die Kurven I und II führen das prozentuale Übergewicht der kleinen Zeitabstände vor Augen, bedingt durch die als Nachwirkung entstandenen Funken. Betrachtet man den Verlauf der Kurven I und II *nach* dem charakteristischen Knick, d. h. im Bereiche der grösseren Verzögerungszeiten, so gelangt man, bei Kurve II durch Vergleich mit einer eingezeichnet gedachten Geraden, bei Kurve III (infolge Raummangel abschnittsweise dargestellt) auf Grund des annähernd parallelen Verlaufs der 5 Kurvenstücke, zur Vermutung, dass die grösseren Verzögerungszeiten für sich allein genommen das Gesetz der rein zufälligen Verteilung erfüllen. Dies würde heissen, dass sich auch in trockenem Stickstoff eine einwandfreie Zählwirkung erzielen liesse, wenn man die Spannung, ähnlich wie bei den Versuchen von ZUBER<sup>26)</sup> nach jedem Funken für eine gewisse Dauer unterbrechen würde.

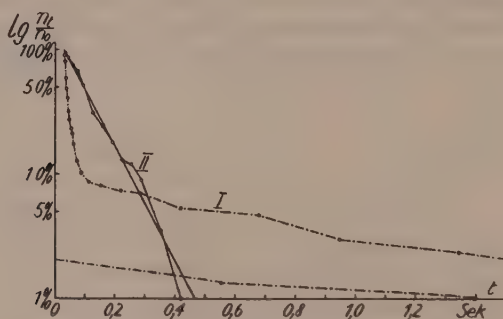


Fig. 15.

Einfluss der Feuchtigkeit auf die stat. Verteilung in Wasserstoff.  
2 Pt-Kugeln ( $r = 0,55$  mm), Ra-Bestr.

	$\sigma$	$n_0$	$t_0$
I	0%	395 Fk.	133''
II	65%	102 Fk.	203''

Ob das besondere Verhalten des Stickstoffs mit der von STRUTT<sup>21)</sup> beobachteten Eigenschaft des Nachglommens zusammenhängt, wäre noch zu untersuchen. STRUTT fand nämlich, dass Stickstoff kurze Zeit, nachdem er von einer elektrischen Entladung durchsetzt war, fortfuhr zu glimmen und dabei elektrisch leitend war.

Bei trockenem Wasserstoff konnte, wie aus Fig. 15 (Kurve I) ersichtlich, ebenfalls der serienmässige, auf Nachwirkung deutende Funkenübergang beobachtet werden. Im Vergleich zu Stickstoff waren aber die Serien weniger deutlich erkennbar, zudem war die Reproduzierbarkeit schlechter. Bei genügendem Wasserdampfgehalt liess sich aber auch bei Wasserstoff ein zähltauglicher Spannungsbereich von wenigen 100 Volt erreichen (Kurve II der Fig. 15).

## b) Sauerstoff und Kohlendioxyd.

Beide Gase zeigen gute Zähleigenschaften. Gleich wie bei Luft war bei Verwendung einer Platinkathode nur ein sehr geringer Feuchtigkeitseffekt festzustellen. Bei Verwendung einer Eisen-Kathode war die durchschnittliche Zahl der natürlichen Stösse für gleiche Überspannungen und Feuchtigkeitsgrade in Sauerstoff etwas grösser und in Kohlendioxyd etwas kleiner als in Luft. Die Beobachtung bei Kohlendioxyd steht im Einklang mit dem Ergebnis von STUBER<sup>22)</sup>, der ausser Luft nur das  $\text{CO}_2$  untersuchte.

Fig. 16 zeigt je eine Messung für Sauerstoff und Kohlendioxyd (beide Gase Stahlflaschen entnommen), die bei Überspannungen von ca. 1900 bzw. 1500 Volt gewonnen wurden.

Überblickt man nochmals das Verhalten der vier Gase, so ergibt sich hinsichtlich ihrer Zählwirkung folgende Reihenfolge: Kohlendioxyd, Sauerstoff, Stickstoff und Wasserstoff, eine Ordnung, die derjenigen ihrer Molekulargewichte entspricht.

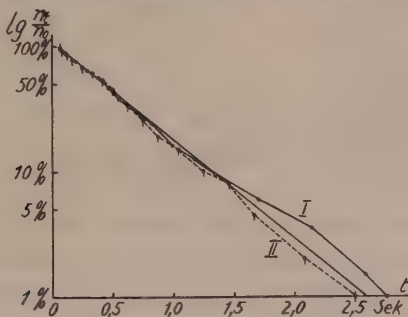


Fig. 16.

Verteilungskurven für  $\text{O}_2$  und  $\text{CO}_2$ , Kugelgefäss, Ra-Bestr.,  $\sigma = 0\%$ ,  $V_b = 4000$  V.

	Gas	$V_0$	$n_0$	$t_0$
I	$\text{O}_2$	2120 V	240 Fk.	60''
II	$\text{CO}_2$	2510 V	218 Fk.	120''

Abschliessend sei erwähnt, dass auch einige orientierende Versuche zur Frage, inwieweit ausser Wasserdampf auch andere Dämpfe einen Einfluss ausüben, ausgeführt wurden. Bei Einwirkung von Kampferdämpfen konnte der bereits von GREINACHER beschriebene Effekt beobachtet werden, der im Verschwinden der Funkenverzögerung besteht. Alkoholdämpfe und Ätherdämpfe schwacher Konzentration führten zu einer starken Einschränkung des zähltauglichen Spannungsbereichs, während Ätherdämpfe starker Konzentration und Chloroformdämpfe die Funkenverzögerung begünstigten und zu einer Verbreiterung des Zählbereichs führten. Bei Chloroform bildete sich allerdings nach 100–200 Funken eine Rußschicht auf der Kathode, die die Zählwirkung stark beeinträchtigte.



### § 10. Zählkurven und Geometrie der Elektroden.

Im folgenden soll festgestellt werden, welchen Einfluss Elektrodenabstand und Elektrodenkrümmung auf die Funkenfrequenz besitzen, unter der Voraussetzung einer konstanten Bestrahlung. Ferner soll im Anschluss an die Untersuchungen von STÜBER<sup>22)</sup> Ausdehnung und Empfindlichkeit des Zählvolumens näher untersucht werden.

#### a) Elektrodenabstand.

Fig. 17 gibt die Zählkurven für verschiedene Elektrodenabstände in der Anordnung Kugel-Platte wieder. Zur Erleichterung

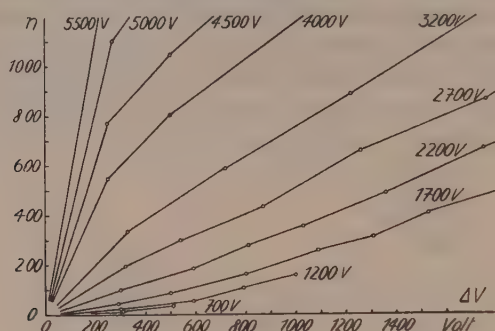


Fig. 17.

Zählkurven bei verschiedenem Elektrodenabstand. Pt-Kugel ( $r = 0.55$  mm), Oerstittstahlplatte, Ra-Bestr.,  $\sigma = 65\%$ ,  $V_0$  als Parameter in Volt.

eines Vergleichs wird die Überspannung, d. h. Betriebsspannung minus Funkenpotential, aufgetragen. Der Erwartung gemäss ist

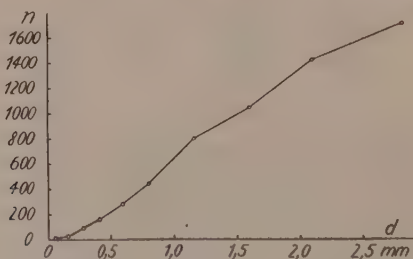


Fig. 18.

$n = f(d)$ . Pt-Kugel ( $r = 0.55$  mm), Oerstittstahlplatte, Ra-Bestr.  
 $\Delta V = 500$  V = konstant,  $\sigma = 65\%$ .

zu erkennen, dass bei gleicher Überspannung um so mehr Funken ausgelöst werden, je grösser der Elektrodenabstand ist. Dieser Sachverhalt ist in Fig. 18 noch besonders zur Darstellung gebracht,

indem die aus Fig. 17 für  $U = 500$  Volt interpolierten Funkenfrequenzen als Funktion des Elektrodenabstandes aufgetragen sind.

Ebenfalls aus Fig. 17 zu lesen ist der in Fig. 19 herausgezeichnete Sachverhalt, wo  $V_b$  konstant belassen und  $d$  verändert wird. Legt man also eine geeignete Betriebsspannung an die Funkenstrecke und verkleinert man sukzessive den anfänglich grossen Elektrodenabstand, so setzen bei einem kritischen Abstand, nämlich dann, wenn  $V_b$  zu  $V_0$  wird, die ersten Funken ein. Dann nimmt die Funkenfrequenz entsprechend der grösser werdenden Überspannung zu, anfänglich stark, dann weniger stark, da sich nun auch die Verkleinerung des Zählvolumens bemerkbar macht. Bei noch kleinern Abständen wächst  $n$  plötzlich wieder stark an, weil dann Funkenverzögerung und Zählwirkung aufhören.

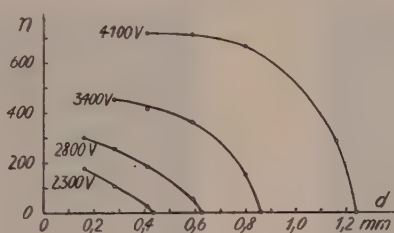


Fig. 19.

$n = f(d)$ . Pt-Kugel ( $r = 0,55$  mm), Oerstistahlplatte, Ra-Bestr.,  
 $\sigma = 65\%$ ,  $V_0 = \text{Parameter}$ .

Eine überzeugende mathematische Formulierung der Gesetzmässigkeit zwischen Überspannung, bzw. max. Feldstärke, Elektrodenabstand und Funkenfrequenz ist trotz verschiedener Annahmen, z. T. in Anlehnung an БАН<sup>2)</sup> u. a. nicht gelungen. Es hat den Anschein, als spiele beim Funkenzähler noch eine weitere, vorläufig nicht erfassbare Variable mit, nämlich die Empfindlichkeit des Zählvolumens.

#### b) Kathodenkrümmung.

Die Versuche ergaben, dass bei gleichem Funkenpotential und gleicher Überspannung und Bestrahlung um so mehr Funken erzeugt werden, je grösser die Kugelradien der Elektroden sind. In Fig. 20 findet sich je eine Versuchsreihe ausgewertet für Messingkathoden verschiedener Krümmung. Die Zählkurven für eine ebene Kathode ( $r = \infty$ ) und zwei hohle Kathoden ( $r = \text{negativ}$ ) ordnen sich im erwarteten Sinne in die Kurvenschar ein. Die konkaven Flächen der Kathoden, die durch Eindrücken von Stahlkugeln geformt wurden, waren Kugelkalotten und hatten oben einen Durchmesser von ca. 2 mm.

Die aus Fig. 20 ersichtliche Zunahme der Funkenzahl mit abnehmender Krümmung ist in der Inhomogenität des Feldes zwischen den Elektroden begründet. Wären als Elektroden zwei ausgedehnte parallele Platten verwendbar, so hätte man beim Überschreiten des Funkenpotentials sozusagen im ganzen Raum zwischen den Elektroden die gleiche zur Funkenbildung ausreichende Feldstärke. Im inhomogenen Feld der Anordnung Kugel-Platte und Kugel-Kugel wird bei geringer Überspannung nur ein kleines achsennahes Gebiet eine hinreichende Feldstärke aufweisen. Mit zunehmender Überspannung wird sich dieser Bereich vergrössern, und zwar um so stärker, je schwächer gekrümmt die Elektroden sind, besonders stark aber bei ebener oder sogar konkav gekrümmter Oberfläche.

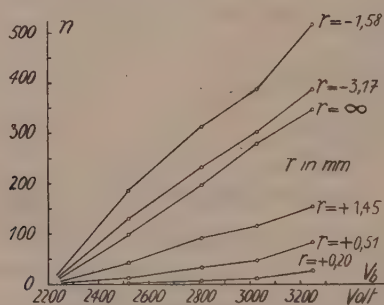


Fig. 20.

Zählkurven für verschiedene Krümmung  $1/r$  der Kathode, Pt.-Anode ( $r = 0,55$  mm).  
Messingkugeln, Ra-Bestr.,  $V_0 = 2200$  V,  $\sigma = 65\%$ .

Obwohl darnach die Veränderung der Funkenzahl mit Krümmung und Überspannung verständlich wird, lassen sich quantitative Schlüsse nicht ohne weiteres ziehen, da auch bei unveränderter Stellung des Ra-Präparates die Bestrahlungsintensität nicht als völlig konstant anzunehmen ist. Bei den grössern Kugeln werden sich nämlich die Reflexionserscheinungen vermehrt geltend machen, und bei konkaven Flächen wird ein Teil der Strahlung durch die Elektroden abgeschirmt.

### c) Funkenraum, Zählvolumen, Funkenfläche.

Unter „Funkenraum“ soll der von den Funken durchsetzte Raum verstanden sein, wie er sich photographisch im Schnitt ergibt, wenn viele Funken übereinander aufgenommen werden. In Fig. 21 seien einige solcher Aufnahmen für verschiedene Elektroden-Materialien und -Abstände wiedergegeben. 21a lässt die Verhältnisse

bei einer zähltüchtigen Funkenstrecke, 21b diejenigen für das zur Zählung unbrauchbare Al erkennen. Hier sind die Funkenräume viel schlanker, z. T., weil die volle Betriebsspannung nie oder nur selten erreicht wird, z. T., weil die Funken einzelne — in Fig. 21b sind es zwei — Stellen der Kathode bevorzugen. Bei einer guten Funkenstrecke (Fig. 21a) lassen sich solche bevorzugte Kathodenpunkte nicht beobachten, und das Funkenpiel erscheint deshalb bei mikroskopischer Betrachtung infolge der über eine ganze Fläche verteilten Vielheit von Überschlagsstellen lebhafter als z. B. bei der Al-Kathode.

Es lag die Vermutung nahe, dass der Funkenraum entweder identisch mit dem Zählvolumen oder doch diesem proportional ist.

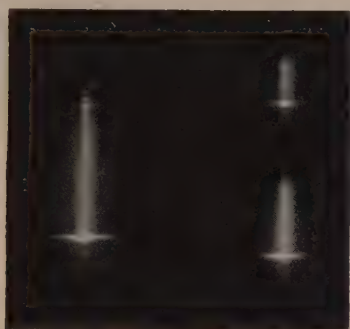


Fig. 21a.

Messing-Platte



Fig. 21b.

Al-Platte

$V_0 = \text{je } 3030, 3970 \text{ und } 4970 \text{ V, } \Delta V = 1000 \text{ V, Ra-Bestr., } \sigma = 65\%.$

In der Annahme ferner, dass die Funkenzahl proportional dem Zählvolumen geht, war dann zu erwarten, dass auch zwischen Funkenraum und Funkenzahl eine lineare Beziehung bestehe. Eine solche konnte indessen nicht festgestellt werden.

Es sollte nun geprüft werden, ob die Funkenzahl in direktem Verhältnis steht zur Grundfläche des Funkenraumes, d. h. zur Fläche der kreisförmigen Überschlagsspuren auf der Kathode. Der Durchmesser der Fläche, von der die Funken ausgingen, liess sich am genauesten durch direkte Beobachtung des Funkenüberganges mittels Messokular bestimmen. Bei der jeweiligen Überspannung wurde unter Verwendung einer grössern Zahl von Entladungen unmittelbar über der Kathode der Ort bestimmt, bis zu dem sich die äussersten Funken von der Mittelachse nach links und rechts entfernten. Es wurde dabei stets symmetrisches Verhalten in bezug auf die Mittelachse beobachtet, obschon die Bestrahlung nur von



der einen Seite erfolgte. Dieser Abstand ergab sich, allerdings mit etwas geringerer Genauigkeit, auch aus photographischen Aufnahmen oder direkt durch nachheriges Ausmessen der kathodischen Überschlagsspuren. In Fig. 22 ist nun der Abstand der beiden Extremlagen als Funktion der Betriebsspannung aufgetragen. Die den einzelnen Messpunkten beigesetzten Zahlen bedeuten die Quotienten zwischen Funkenfrequenz und dem Quadrat des zugehörigen Ordinatenwertes. Die starken Änderungen der Zahlenwerte liegen ausserhalb der bei Bestehen einer linearen Beziehung zwischen Funkenfläche und Funkenfrequenz zulässigen Streuung, und der gesetzmässige Zusammenhang bleibt vorläufig noch offenes Problem.

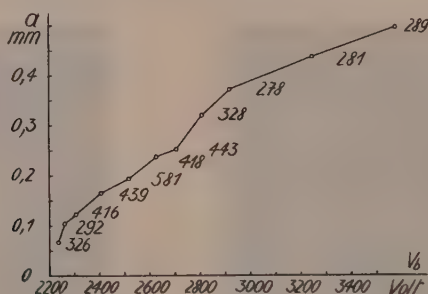


Fig. 22.

Durchmesser der Funkenfläche als Funktion der Betriebsspannung.

Pt-Kugel ( $r = 0,55$  mm), Messingplatte, Ra-Bestr.,  $V_0 = 2220$  V,  $\sigma = 65\%$ .

Nachdem einfache Beziehungen zwischen Funkenfrequenz und Funkenraum bzw. Funkenfläche nicht zu finden waren, musste geschlossen werden, dass sich Funkenraum und Zählvolumen nicht nur quantitativ, sondern auch qualitativ mit der Spannung ändern, etwa in dem Sinne, dass die Empfindlichkeit eines bestimmten Volumenelements des Zählraumes mit wachsender Spannung zunimmt, und dass, wie bereits STUBER festgestellt hat, das Zählvolumen nach aussen nicht scharf begrenzt werden kann. Bekanntlich existieren auch beim Zählrohr solche Raumbezirke, deren Empfindlichkeit mit der Spannung ändert, und die zum grössten Teil den leichten Anstieg des „horizontalen“ Teils der Zählkurve bestimmen. Es handelt sich beim Zählrohr um die beiden Enden, die nach JORGENSEN<sup>14)</sup> etwa 5—10% des ganzen Zählvolumens ausmachen.

Es fragt sich weiter, ob die Empfindlichkeit des Zählvolumens beim Funkenzähler ein Maximum erreichen kann, so dass bei wei-

terem Spannungsanstieg keine Zunahme der Funkenfrequenz mehr eintritt. Als solche vollemfindliche Teile des Zählvolumens kommen, wie in § 11 dargetan wird, in erster Linie die zentral gelegenen in Frage.

### § 11. Kanalversuche.

Für diese wurde eine 2 mm dicke Messingplatte verwendet, die in der Mitte eine zylindrische Bohrung aufwies, mit einem oberen engern Teil von 0,12 mm Weite und 0,6 mm Länge und einem untern weitem Teil von 0,3 mm Weite und 1,4 mm Länge. Koaxial zu dieser Öffnung war unten ein Messingring aufgelötet, in den sich die Poloniumpräparate einschieben und mittels eines Riegels festhalten liessen. Die koaxiale Einstellung der Anode zur Kathode konnte mit drei Mikrometerschrauben einreguliert werden und galt jeweils als erreicht, wenn sich die Funkenübergänge gleichmässig um die Kathodenöffnung herum verteilten, was sich mikroskopisch gut kontrollieren liess.

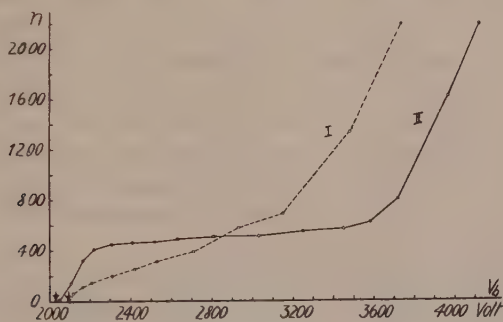


Fig. 23.

Zählkurven für durchbohrte Kathode.

Messingplatte, Pt-Stab ( $r = 0,55$  mm),  $\alpha$ -Strahlen,  $V_0 = 2195$  V,  $\sigma = 65\%$ .

Wurden die  $\alpha$ -Teilchen dem Zählraum durch den Kanal zugeführt, so ergab sich ein um 60—70 Volt tieferes Funkenpotential, als wenn bei gleichem Elektrodenabstand und gleichem Präparat von der Seite bestrahlt wurde, und dieses Funkenpotential bei seitlicher Bestrahlung war seinerseits in gewohnter Weise rund 100 Volt niedriger als bei seitlicher Bestrahlung mit Radium.

Wurde die einregulierte Funkenstrecke in der bisherigen Weise von der Seite betrachtet, so verhielt sie sich, wie an der Zählkurve I der Fig. 23 zu erkennen ist, ungefähr wie eine normale Funkenstrecke. Einzig der Zählbereich erwies sich um einige 100 Volt kleiner, was im Zusammenhang mit dem die Ablösung von Elektro-

nen begünstigenden mehr oder weniger scharfen oberen Rand des Kanals stehen dürfte. Bei der Bestrahlung von unten hingegen tritt nun, wie aus Kurve II der Fig. 23 hervorgeht, nach einem ersten Spannungsbereich von etwa 300 Volt, in dem die Funkenfrequenz mit der Spannung stark zunimmt, ein Spannungsbereich von etwa 1000 Volt auf, in dem sich  $n$  nur wenig ändert. Das Ende dieses spannungsunempfindlichen und für Messzwecke besonders geeigneten Bereichs wird durch einen erneuten Anstieg gekennzeichnet, der einer starken Zunahme der natürlichen Stösse entspricht.

Die schwache Zunahme der Funkenfrequenz im horizontalen Teil der Zählkurve ist nur zu einem verschwindenden Teil eine Folge der natürlichen Stösse. Aus Versuchen mit Kanälen grösseren Durchmessers war nämlich zu schliessen, dass auch  $\alpha$ -Teilchen, die durch Blendenwirkung des Kanals am Austritte verhindert werden, bei genügender Überspannung durch ihre Sekundärstrahlung sozusagen aus der Tiefe zur Funkenauslösung führen können.

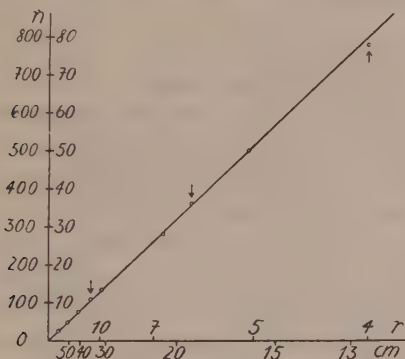
Beschränkt man also die Bestrahlung der Funkenstrecke auf den achsennahen Teil des Zählvolumens, so nimmt zwar anfänglich über einen Spannungsbereich von ungefähr 300 Volt die Ansprechbarkeit zu, erreicht aber ein Maximum. Die Zahl der Funkenübergänge entspricht dann offenbar der Zahl der aus dem Kanal austretenden  $\alpha$ -Teilchen. Dieser Befund stimmt mit den Ergebnissen der Koinzidenzversuche von STUBER<sup>22)</sup> überein, da anzunehmen ist, dass die  $\alpha$ -Teile in beiden Funkenstrecken nur zentrale Teile des Zählvolumens durchsetzten.

Ob ähnliche Sättigungserscheinungen der Empfindlichkeit auch für die schwächer ionisierenden  $\beta$ -Strahlen und namentlich für die kurzwelligen Strahlungen bestehen, muss spätern Untersuchungen vorbehalten bleiben. Immerhin wurde der Kanalversuch noch mit dem U. V. einer Quarzlampe durchgeführt, während das Prinzip der Ausblendung bei den durchdringenden Strahlen kaum in Frage kommen konnte. Obgleich für die Bestrahlung mit U. V. der Durchmesser des Kathodenkanals durch Einkitten einer Glaskapillare schliesslich auf 0,03 mm verkleinert wurde, resultierte wieder eine Zählkurve mit der gewohnten gleichmässigen Steigung. Aus diesem Verhalten allein dürfte aber noch nicht auf eine mit der Spannung zunehmende Empfindlichkeit des Zählvolumens geschlossen werden, da bei diesem Versuche unvermeidliche Reflexionserscheinungen an den Elektroden im Spiele sind. Zudem werden die den Kanal verlassenden Strahlen nicht alle parallel sein, da infolge mehrfacher Reflexion auch schiefgerichtete Strahlen den Kanal durchsetzen und verlassen können.

Für die praktische Verwendung des Funkenzählers wichtiger als die Frage der Ansprechbarkeit ist die nach der Proportionalität mit der Bestrahlungsintensität. Diese ist auf Grund der statistischen Untersuchungen zu bejahen, die Vernachlässigbarkeit der natürlichen Stöße vorausgesetzt. Die Proportionalität zwischen Funkenzahl und Bestrahlung wurde durch Prüfung des Abstandsgesetzes noch besonders untersucht.

## § 12. Abstandsgesetz.

Strahlenquelle (Ra-Präparat von 0,5 mg) und Funkenzähler (hier die eine Hälfte des Kugelgefäßes) wurden so aufgestellt, dass störende Reflexionen an Apparateilen und Präparathaltern möglichst vermieden waren. Es wurden nun für verschiedene Präparatabstände  $r_i$  (auf 0,5 mm genau messbar) die entsprechenden Funkenfrequenzen  $n_i$  aus 5—20 Minuten dauernden Messungen be-



$r_i$ cm	$n_i$	$r_i^2 n_i$ $\cdot 10^{-2}$
4	787	125,9
6	363	130,7
11	109	131,9
16	50,5	129,3
21	28,4	125,2
31	13,5	129,7
41	7,69	129,3
51	4,89	127,2
71	2,58	130,1

Fig. 24.  
Abstandsgesetz.

stimmt. Wie die Tabelle (bei Fig. 24) zeigt, ergibt sich das Produkt  $n_i r_i^2$  als weitgehend konstant. Die Abweichungen liegen innerhalb der durch Funkenstatistik und Messgenauigkeit bedingten Streuung, die übrigens auch eine Korrektur infolge Schwächung der  $\gamma$ -Strahlen durch Absorption und Streuung nicht erforderlich machte.

In Fig. 24 sind die  $m$  Messpunkte (hier  $m = 9$ ) so aufgetragen, dass ein unmittelbarer Vergleich mit der Ausgleichsgeraden

$$n = \frac{1}{r^2} \cdot \frac{\sum_{i=1}^m n_i r_i^2}{m}$$



möglich ist. Dabei sind die 3 Messpunkte (durch Pfeile bezeichnet) für die kleinem Abstände 4, 6 und 11 cm im verkleinerten Koordinatenmaßstabe 1:10 aufgetragen.

Aus Fig. 24 und der Tabelle geht hervor, dass das Abstandsgesetz bis auf eine Entfernung von 4 cm gut erfüllt ist. Von da ab traten indessen etwas zu kleine Funkenzahlen auf, was den zunehmenden Störungen durch Reflexion und Absorption zuzuschreiben ist.

Die vorliegende Arbeit wurde auf Anregung von Herrn Prof. Dr. H. GREINACHER im Physikalischen Institut der Universität Bern ausgeführt. Es ist mir eine angenehme Pflicht, meinem hochverehrten Lehrer für seine fördernde Anteilnahme herzlich zu danken.

Physikalisches Institut der Universität Bern.

### Literatur.

- 1) H. BATEMAN, Phil. Mag. (6), **20**, 698 (1910).
- 2) F. BATH, Zeitschr. f. Phys. **86**, 275 (1933).
- 3) W. BRAUNBECK, Zeitschr. f. Phys. **36**, 582 (1926).
- 4) H. GEIGER und W. MÜLLER, Phys. Zeitschr. **30**, 489 (1929).
- 5) H. GREINACHER, Helv. Phys. Acta **7**, 360 und 514 (1934).
- 6) H. GREINACHER, Helv. Phys. Acta **8**, 89 und 265 (1935).
- 7) H. GREINACHER, Zeitschr. f. techn. Phys. **16**, 165 (1935).
- 8) H. GREINACHER, Helv. Phys. Acta **9**, 590 (1936).
- 9) H. GREINACHER, Zeitschr. f. techn. Phys. **19**, 132 (1938).
- 10) H. GREINACHER, Ann. d. Phys. **16**, 708 (1905).
- 11) E. HENNING und R. SCHADE, Zeitschr. f. Phys. **90**, 597 (1934).
- 12) G. HERTZ, Zeitschr. f. Phys. **106**, 102 (1937).
- 13) P. JEANGUENIN, Helv. Phys. Acta **17**, 319 (1944).
- 14) D. JORGENSEN, Rev. Sci. Instr. **10**, 34 (1939).
- 15) W. KUTZNER, Zeitschr. f. Phys. **21**, 281 (1924).
- 16) M. v. LAUE, Ann. d. Phys. **76**, 261 (1925).
- 17) K. S. LION, Helv. Phys. Acta **12**, 70 (1939).
- 18) H. MAIER-LEIBNITZ, Phys. Zeitschr. **43**, 333 (1942).
- 19) W. SCHMIDT, Zeitschr. f. Instr. u. d. **49**, 504 (1929).
- 20) R. STRIGEL, Elektr. Stossfestigkeit, Berlin, Springer (1939).
- 21) J. STRUTT, Proc. Roy. Soc. **87**, 183 (1912).
- 22) R. STUBER, Helv. Phys. Acta **12**, 109 (1939).
- 23) H. VOLZ, Zeitschr. f. Phys. **93**, 539 (1935).
- 24) W. WEBER, Arch. d. Elektrot. **36**, 166 (1942).
- 25) S. WERNER, Zeitschr. f. Phys. **90**, 384 (1934).
- 26) K. ZUBER, Ann. d. Phys. **76**, 231 (1925).
- 27) K. ZUBER, Ann. d. Phys. **81**, 205 (1926).
- 28) Handbuch d. Exp. Phys. **1**, 179 (1926).
- 29) Intern. Crit. Tables, Vol. VI, 79 (1929).

# Empfindlichkeit von Zählrohren mit Blei-, Messing- und Aluminiumkathode für $\gamma$ -Strahlung im Energieintervall 0,1 MeV bis 3 MeV

von H. Bradt, P. C. Gugelot, O. Huber, H. Medicus, P. Preiswerk  
und P. Scherrer.

(18. II. 1946.)

Für viele kernphysikalische Untersuchungen, so etwa zum Nachweis sehr schwacher  $\gamma$ -Linien oder für  $(\beta, \gamma)$ - und  $(\gamma, \gamma)$ -Koinzidenzmessungen sind Zähler mit möglichst grosser Empfindlichkeit für  $\gamma$ -Strahlung erforderlich. Zählrohre, deren Kathode aus einem schweren Element (Bi, Pb, Au, Pt) besteht, sind dafür besonders geeignet. Ihre Empfindlichkeit ist, infolge der mit steigender Ordnungszahl  $Z$  stark anwachsenden photoelektrischen Absorption, für  $\gamma$ -Strahlung nicht sehr hoher Energie (0,1 MeV bis 1 MeV) mehrfach grösser als diejenige der üblicherweise verwendeten Messing- und Aluminiumzählrohre (NORLING<sup>1</sup>), BRADT<sup>2</sup>)).

Die Verwendung von Zählrohren, deren Kathode aus einem Element hoher Ordnungszahl besteht, ist besonders dann angezeigt, wenn eine schwache, weiche  $\gamma$ -Strahlung in Gegenwart noch anderer härterer und intensiverer Komponenten nachgewiesen werden soll. So haben z. B. Versuche von SIZOO und COUMOU<sup>3</sup>), die 92 keV Kern- $\gamma$ -Strahlung des UX<sub>1</sub>, deren  $L_1$ - und  $M_1$ -Konversionslinien von L. MEITNER beobachtet worden sind, durch Absorptionsmessungen unter Verwendung eines dickwandigen Messingzählrohrs nachzuweisen, zu keinem eindeutigen Ergebnis geführt. Infolge der geringen Sensibilität der Messingzählrohre für weiche  $\gamma$ -Strahlung hob sich die 92 keV-Komponente nicht genügend vom Untergrund der härteren UX- $\gamma$ -Strahlung ab. Wird dagegen die Absorptionskurve der UX- $\gamma$ -Strahlung unter Verwendung, inwendig vergoldeter Zählrohre aufgenommen, so ist aus ihrem Verlauf die Anwesenheit der 92 keV-Komponente ohne weiteres ersichtlich.

Wir haben das Verhältnis der Sensibilitäten von Zählrohren mit verschiedenem Kathodenmaterial (Pb resp. Au, Messing, Al) in Funktion der Quantenenergie experimentell bestimmt durch den Vergleich der Stosszahlen solcher Zählrohre bei Bestrahlung mit  $\gamma$ -Strah-

len bekannter Energie; es würde auch berechnet unter Zugrundelegung des Ansatzes von v. DROSTE<sup>4)</sup>

$$\varepsilon = 2 C (\tau R_{\tau} + \sigma \bar{R}_{\sigma} + 2 \kappa R_{\kappa})$$

$\tau, \sigma, \kappa$ : Absorptionskoeffizienten für Photoeffekt ( $\tau$ ), Comptonstreuung ( $\sigma$ ) und Paarerzeugung ( $\kappa$ ).

$R_{\tau}, R_{\sigma}, R_{\kappa}$ : Reichweiten der durch die entsprechenden Absorptionsvorgänge in der Kathode ausgelösten Sekundärelektronen.

Für die Absorptionskoeffizienten  $\tau, \sigma, \kappa$  sind die nach den bekannten theoretischen Formeln von HULME et al. (Photoeffekt), KLEIN und NISHINA (Comptonstreuung) und BETHE und HEITLER (Paarerzeugung) berechneten Werte verwendet worden (vgl. GENTNER<sup>5)</sup> und SIZOO u. COUMOU<sup>3)</sup>). Der photoelektrische Absorptionskoeffizient für Quantenenergien unterhalb 0,2 MeV wurde nach der empirischen Formel von READ<sup>6)</sup> berechnet. Für die Abhängigkeit der Reichweiten

$$R_{\tau} = R (h\nu - E_k)$$

$$\bar{R}_{\sigma} = 0,6 R_{\max} = 0,6 R \left( \frac{2 h\nu/mc^2}{1 + 2 h\nu/mc^2} h\nu \right)$$

$$\bar{R}_{\kappa} = R \left( \frac{h\nu - 2 mc^2}{2} \right)$$

von der Elektronenenergie wurden die von VARDER und SCHONLAND bestimmten Werte der praktischen Reichweite in Aluminium zu Grunde gelegt, wobei angenommen wird, dass das Verhältnis der Reichweiten in verschiedenen Materialien in dem in Betracht kommenden Bereich von der Energie unabhängig ist (BOTHE<sup>7)</sup>). Diese Annahme stellt allerdings nur eine recht grobe Näherung dar.

Die so berechnete Zählrohrsensibilität  $\varepsilon$  ist für Zählrohre mit Messingkathode\*) in Fig. 1 (Kurve 1) in Funktion der Quantenenergie graphisch dargestellt; die Kurve ist für den Energiewert 0,51 MeV (Vernichtungsstrahlung) angeschlossen an den experimentellen Wert.

Das Verhältnis der Sensibilitäten von Zählrohren mit Blei- und Kupferkathode  $\varepsilon_{\text{Pb}}/\varepsilon_{\text{Cu}}$  und von Zählrohren mit Kupfer- und Aluminiumkathode  $\varepsilon_{\text{Cu}}/\varepsilon_{\text{Al}}$  — berechnet nach v. DROSTE bis auf einen konstanten Faktor — ist in Fig. 2 aufgetragen, angeschlossen an die experimentellen Werte für 0,51 MeV-Vernichtungsstrahlung

$$\left( \frac{\varepsilon_{\text{Pb}}}{\varepsilon_{\text{Mess}}} \right)_{0,51 \text{ MeV}} = 3,30; \quad \left( \frac{\varepsilon_{\text{Mess}}}{\varepsilon_{\text{Al}}} \right)_{0,51 \text{ MeV}} = 0,98.$$

\*) Die Berechnung wurde für Kupfer ausgeführt. Für die Messungen wurden Zählrohre mit Messingkathode verwendet.

Für die Messung der relativen Sensibilitäten von Blei-, Messing- und Aluminiumzählrohren wurden mit 10 cm Hg Argon und 1 cm Hg Äthylalkohol gefüllte Zählrohre von 2,3 cm Innendurchmesser, 5,5 cm wirksamer Drahtlänge und 1 mm Wandstärke verwendet. Zur Herstellung der Zählrohre mit Bleikathode wurde ein Bleirohr in ein passendes Messingrohr hineingepresst und beide Rohre auf je 0,5 mm Wandstärke abgedreht. Die Wandstärke der Messing- und Aluminiumzählrohre von 1 mm wurde bei Messungen mit sehr harter  $\gamma$ -Strahlung (z. B. der 2,62 MeV-Strahlung des

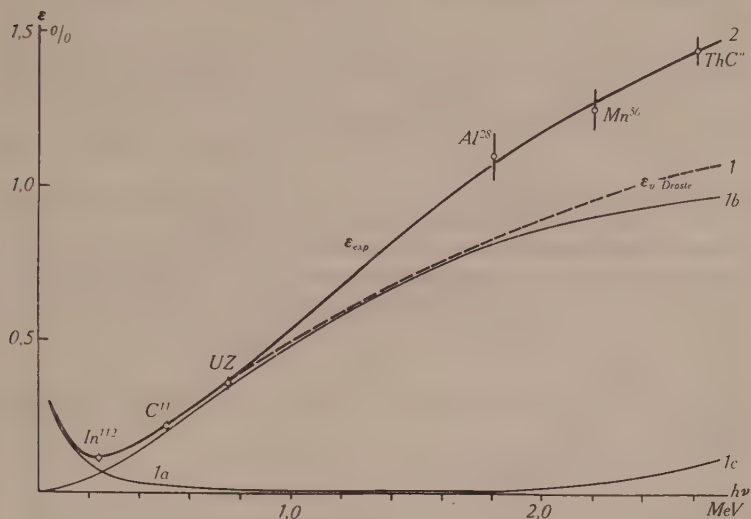


Fig. 1.

*Sensibilität von Zählrohren mit Messingkathode.*

1: Berechnet für Cu-Kathode nach dem Ansatz von v. DROSTE.

a) Anteil des Photoeffekts    b) Anteil des Comptoneffekts

c) Anteil der Paarerzeugung.

2: Mit Messingzählrohr experimentell bestimmte Kurve.

ThC'') durch über das Zählrohr geschobene Messing- bzw. Aluminiumzylinder so verstärkt, dass sie nie kleiner war als die Reichweite der schnellsten Sekundärelektronen. Zur Messung der Zählrohrsensibilität für Quantenenergien unterhalb 300 keV wurden neben dem 1 mm-Aluminiumzählrohr zwei Messingzählrohre gleicher Dimension verwendet, deren Kathoden auf 0,1 mm abgedreht worden waren. Das eine dieser Zählrohre wurde inwendig elektrolytisch vergoldet (Niederschlag von 20 mg/cm<sup>2</sup> Au) und ersetzte das Bleizählrohr, dessen Wand die weiche Strahlung schon zu stark absorbiert. (Der Unterschied der Sensibilität einer



Gold- und einer Bleikathode wird im Folgenden ebenso vernachlässigt wie der Unterschied der Sensibilität einer Kupfer- und einer Messingkathode.) Bei allen folgenden Angaben und den Daten der Figuren 2 und 3 ist die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in der Zählrohrwand berücksichtigt.

Als „Lichtquellen“ wurden radioaktive Isotope, welche möglichst homogene  $\gamma$ -Strahlung aussenden, verwendet. Messungen der Verhältnismerte der Zählrohrsensibilitäten wurden mit folgenden Strahlungen ausgeführt:

1. der 68 keV-K-Röntgenstrahlung des Au (emittiert beim K-Einfang des  $\text{Hg}^{197}$ )
2. der 88,4 keV- und der 93,5 keV- $\gamma$ -Strahlung der Silberisomere  $\text{Ag}^{*107}$  und  $\text{Ag}^{*109}$  (BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>8</sup>))
3. der 173 keV- und der 247 keV- $\gamma$ -Strahlung des 65 h-In<sup>112</sup> (LAWSON und CORK<sup>9</sup>))
4. der 330 keV- $\gamma$ -Strahlung des  $\text{Cr}^{51}$  (BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>10</sup>))
5. der 510 keV-Annihilationsstrahlung der Positronen des  $\text{C}^{11}$
6. der 750 keV- $\gamma$ -Strahlung des UZ (BRADT und SCHERRER<sup>11</sup>))
7. der 1,14 MeV- $\gamma$ -Strahlung des  $\text{Zn}^{65}$  (DEUTSCH, ROBERTS und ELLIOT<sup>12</sup>))
8. der 1,33 MeV- $\gamma$ -Strahlung des  $\text{Sc}^{44}$  (HIBDON, POOL und KURBATOV<sup>13</sup>))
9. der 2,62 MeV- $\gamma$ -Strahlung des  $\text{ThC}''$ .

Die Resultate dieser Messungen sind die in Fig. 2 eingetragenen Messpunkte. Die ausgezogenen Kurven verbinden die für Energien zwischen 0,25 MeV und 2,6 MeV nach v. DROSTE berechneten Werte, angeschlossen an den experimentellen Wert für die Energie 0,51 MeV. Die Übereinstimmung der Messwerte mit den nach v. DROSTES Formel berechneten Relativwerten\*) ist gut. Für die Berechnung der *Verhältnisse der Sensibilitäten* von Blei-, Messing- und Aluminiumzählrohren, die, wie Fig. 2 zeigt, nur in einem relativ kleinen Energieintervall wesentlich von Eins verschieden sind, stellt also der Ansatz von v. DROSTE eine genügende Approximation dar.

\*) Im kurzwelligen Röntgengebiet in der Nähe der K-Kante kann der Ansatz von v. DROSTE, in dem sinngemäss  $\tau R_{\tau}$  durch  $\tau^K R_{\tau}^K + \tau^L R_{\tau}^L + \dots$  zu ersetzen ist, auch nicht mehr näherungsweise verwendet werden. Der Verlauf der Kurve  $\epsilon_{\text{Pb}}$  der Fig. 2 ist für Energien unterhalb 0,25 MeV (gestrichelt eingetragen) den Messwerten angepasst.

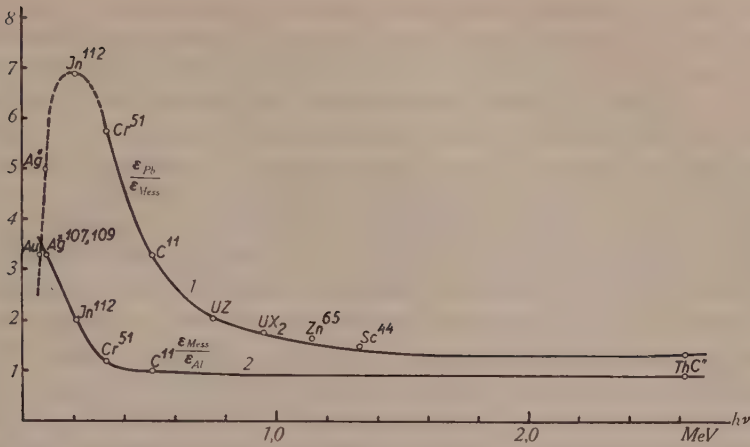


Fig. 2.

Verhältnis der Sensibilitäten von Blei- und Messingzählrohren (Kurve 1) und von Messing- und Aluminiumzählrohren (Kurve 2).

(Die ausgezogenen Kurven sind mit dem Ansatz von v. DROSTE berechnet. Für Messungen unterhalb 0,25 MeV wurden an Stelle von Zählrohren mit Bleikathode solche mit Goldkathode verwendet.)

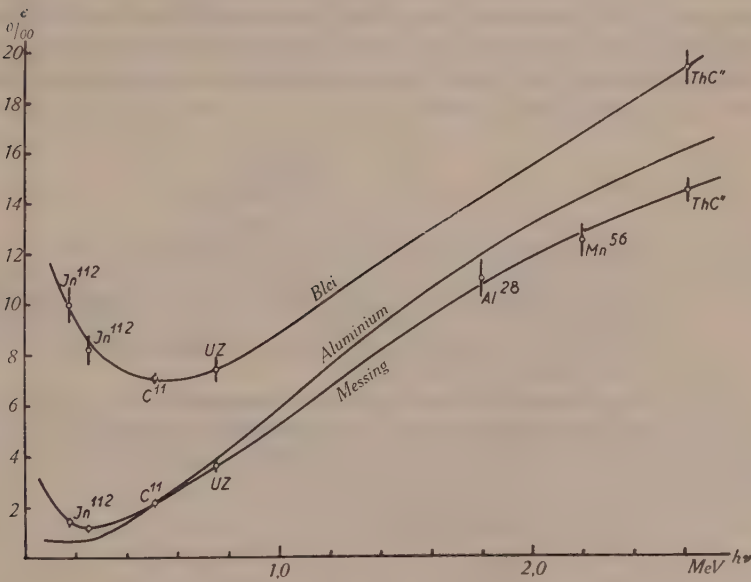


Fig. 3.

Empfindlichkeit von Zählrohren mit Blei-, Aluminium- und Messingkathode in Funktion der Quantenenergie.

Im allgemeinen ist natürlich nicht nur die Kenntnis der Verhältnisse der Sensibilitäten verschiedener Zählrohre, sondern auch die Kenntnis der *absoluten Sensibilität eines bestimmten Zählrohrs in Funktion der Quantenenergie der zu registrierenden  $\gamma$ -Strahlung* (Fig. 3) von Nutzen. Diese Funktion muss bekannt sein, damit aus den mit einem Zählrohr gemessenen Stosszahlen die wahre Intensität von  $\gamma$ -Linien bestimmt werden kann. Fig. 1, in der neben der für Kupferkathode berechneten Sensibilitätskurve auch die Messwerte (s. u.) eingezeichnet sind, zeigt, dass für die Darstellung der Variation der Zählrohrsensibilität mit der Quantenenergie der v. DROSTESche Ansatz keine gute Approximation mehr darstellt. Die berechnete Kurve verläuft bei grösseren Energien wesentlich flacher als die empirische Kurve; der v. DROSTESche Ansatz gibt die Variation der Zählrohrsensibilität mit der Quantenenergie jeweils nur innerhalb eines begrenzten Energieintervalls mit genügender Genauigkeit wieder. Dies ist ohne weiteres verständlich, wenn wir überlegen, auf was für eine Vernachlässigung der Ansatz von v. DROSTE hinausläuft.

Nach Definition ist die *Zählrohrsensibilität*  $\varepsilon$  gleich der Zahl der durch ein Bündel paralleler  $\gamma$ -Strahlen in der Zählrohrwand ausgelösten und in das Innere des Zählrohrs gelangenden Sekundärelektronen, dividiert durch die Zahl der das Zählrohr durchsetzenden Quanten. Die Zahl der pro  $\gamma$ -Quant im Füllgas des Zählrohrs direkt erzeugten Ionen kann für härtere  $\gamma$ -Strahlung im allgemeinen vernachlässigt werden.

Ist

$$\varepsilon = \sum_{k=1}^3 \varepsilon_k \quad \begin{array}{l} k = 1: \text{Photoeffekt} \\ k = 2: \text{Comptonstreuung} \\ k = 3: \text{Paarerzeugung} \end{array}$$

$n_0$  die Anzahl der Atome pro  $\text{cm}^3$  der Kathode

$\sigma_k(h\nu, E) dE$  der differentielle Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung eines Sekundärelektrons der Energie  $E \dots E + dE$  durch Photoeffekt ( $k = 1$ ), Comptoneffekt ( $k = 2$ ) oder Paarerzeugung ( $k = 3$ ) eines  $\gamma$ -Quants der Energie  $h\nu$

$D(E, x)$  die Wahrscheinlichkeit, gemittelt über alle Richtungen, dafür, dass ein in der Tiefe  $x$  ausgelöstes Elektron der Energie  $E$  bis in das Innere des Zählrohrs gelangt (Durchlässigkeit)

so ist

$$\varepsilon_k(h\nu) = \pi n_0 \int_0^{E_{\max}} \int_0^{R(E)} \sigma_k(h\nu, E) D(E, x) dE dx.$$

Wäre die Funktion  $D\left(E, \frac{x}{R(E)}\right)$  von der Energie  $E$  unabhängig,

so liesse sich die Integration nach der Schichtdicke  $x$  ohne weiteres ausführen:

$$\varepsilon_k(h\nu) = \text{const. } n_0 \int_0^{E_m} \sigma_k(h\nu, E) R(E) dE \sim R_k(E_m) \mu_k(h\nu).$$

Wir fielen damit auf den Ansatz von v. DROSTE zurück ( $\mu_k = n_0 \int \sigma_k dE = \text{Absorptionskoeffizient}$ ). Dieser Ansatz ist also im wesentlichen gleichbedeutend mit der Annahme, dass die Durchlässigkeit einer Schichtdicke  $x$  eines bestimmten Materials für Elektronen der Energie  $E$  nur vom Verhältnis  $\frac{x}{R(E)}$  abhängt. Wie Absorptionsmessungen von BLEULER und ZÜNTZ<sup>14</sup> zeigen, ist dies aber keineswegs der Fall: je grösser die Energie der Elektronen ist, um so grösser ist die Durchlässigkeit für gleiche Werte von  $x/R$ . Es ist daher zu erwarten, dass die Zählrohrsensibilität mit wachsender Quantenenergie rascher ansteigt als nach der Formel von v. DROSTE. Eben dies ergeben auch die Messungen (Fig. 1).

Wir haben die Absolutwerte der Zählrohrsensibilität für eine Reihe von Quantenenergien experimentell bestimmt:

1. Für die *0,51 MeV-Annihilationsstrahlung* der Positronen des  $C^{11}$  ergaben Messungen der  $(\gamma, \gamma)$ -Koinzidenzrate, die wegen der extremen Richtungskopplung der zwei bei der Annihilation entstehenden, in diametral entgegengesetzter Richtung auseinanderfliegenden Quanten vom Raumwinkel Quelle—Zählrohr unabhängig ist, die Sensibilitätswerte

$$\varepsilon_{0,51 \text{ MeV}}^{\text{Pb}} = (7,1 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}; \quad \varepsilon_{0,51 \text{ MeV}}^{\text{Mess}} = (2,15 \pm 0,07) \cdot 10^{-3}.$$

2.  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzmessungen mit UZ (BRADT und SCHERRER<sup>11</sup>) ergaben für die verhältnismässig homogene *UZ- $\gamma$ -Strahlung* der mittleren Energie 0,75 MeV die Sensibilitätswerte

$$\varepsilon_{0,75 \text{ MeV}}^{\text{Pb}} = (7,4 \pm 0,5) \cdot 10^{-3}; \quad \varepsilon_{0,75 \text{ MeV}}^{\text{Mess}} = (3,6 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}.$$

3. Nach LAWSON und CORK<sup>9</sup>) ist der K-Einfang des dem Isotop der Masse 112 zugeordneten *65h-Indiums* von der Emission zweier  $\gamma$ -Linien der Energien 173 keV und 247 keV begleitet. Diese Energiewerte wurden durch Messung des Spektrums der Konversionselektronen im magnetischen Spektrographen bestimmt. LAWSON und CORK lassen offen, ob von beiden angeregten Niveaus aus der Übergang direkt in den Grundzustand stattfindet, oder ob die 173 keV- und 247 keV-Quanten sukzessive in Kaskade emittiert werden.



Wir haben durch  $(\gamma, \gamma)$ -Koinzidenzmessungen unter Verwendung zweier dünnwandiger, inwendig vergoldeter Zählrohre zeigen können, dass das letztere der Fall ist, d. h. dass die beiden Linien in Kaskade emittiert werden. Aus dem Wert der, bei einem von Quelle und Zählrohr aufgespannten Raumwinkel  $\alpha = \frac{\Omega}{4\pi} = 0,095$  gemessenen  $(\gamma, \gamma)$ -Koinzidenzrate von  $R_{\gamma, \gamma} = \frac{K}{Z} = 0,72 \cdot 10^{-3}$  be-

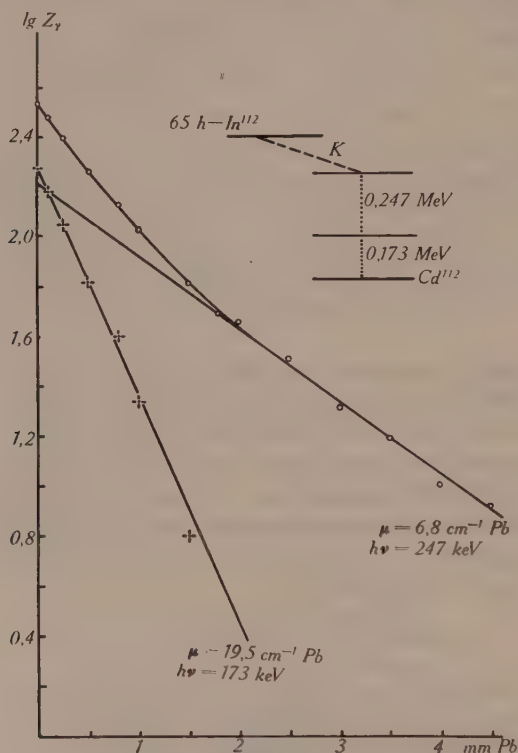


Fig. 4.

Absorptionskurve der  $\gamma$ -Strahlung der  $65 \text{ h-In}^{112}$ .

Die Quanten von 173 keV und 247 keV werden in Kaskade emittiert. Die in der Skizze eingezeichnete Reihenfolge der Emission der Quanten ist willkürlich.

rechnet sich die mittlere Sensibilität der Goldzählrohre für die beiden Linien nach Berücksichtigung der Absorption in einem Al-Filter und der Zählrohrwand zu  $\epsilon_{0,2 \text{ MeV}}^{\text{Au}} = (9,0 \pm 0,6) \cdot 10^{-3}$ . Eine Korrelation der Emissionsrichtungen der beiden in Kaskade emittierten 173 keV- und 247 keV-Quanten konnte nicht nachgewiesen werden:

$$\left| \left[ W(\pi) - W\left(\frac{\pi}{2}\right) \right] / W\left(\frac{\pi}{2}\right) \right| < 0,1.$$

Die mit einem Goldzählrohr gemessene Absorptionskurve der  $\gamma$ -Strahlung des  $65\text{ h-In}^{112}$  (Fig. 4) lässt sich vollständig in zwei homogene Komponenten zerlegen, deren Absorptionskoeffizienten ( $19,5\text{ cm}^{-1}$  und  $6,8\text{ cm}^{-1}\text{ Pb}$ ) den von LAWSON und CORK bestimmten Quantenenergien von  $173\text{ keV}$  und  $247\text{ keV}$  entsprechen. Da die wahren Intensitäten der beiden in Kaskade emittierten Linien gleich gross sind, ist das Verhältnis der Anfangsintensitäten der beiden Komponenten der Absorptionskurve gerade gleich dem Verhältnis der Zählrohrsensibilitäten  $\varepsilon_{173\text{ keV}}^{\text{Au}} : \varepsilon_{247\text{ keV}}$ . Nach Berücksichtigung der Absorption in einem eingeschalteten  $2\text{ mm-Aluminiumfilter}$  und in der Zählrohrwand ergibt sich als Wert dieses Verhältnisses

$$\varepsilon_{0,173\text{ MeV}}^{\text{Au}} : \varepsilon_{0,247\text{ MeV}}^{\text{Au}} = 1,2$$

und somit

$$\varepsilon_{0,173\text{ MeV}}^{\text{Au}} = (10,0 \pm 0,7) \cdot 10^{-3}; \quad \varepsilon_{0,247\text{ MeV}}^{\text{Au}} = (8,2 \pm 0,6) \cdot 10^{-3}.$$

Der mittlere Wert des Verhältnisses  $\varepsilon^{\text{Au}} : \varepsilon^{\text{Mess}}$  wurde für die  $\text{In}^{112}$ - $\gamma$ -Strahlung zu  $\varepsilon^{\text{Au}} / \varepsilon^{\text{Mess}} = 6,9$  bestimmt. Damit wird

$$\varepsilon_{0,173\text{ MeV}}^{\text{Mess}} = (1,45 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}; \quad \varepsilon_{0,247\text{ MeV}}^{\text{Mess}} = (1,2 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}.$$

4.  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzmessungen wurden mit reinem  $\text{ThC''}$ , das nach der Rückstossmethode auf Aluminiumfolien isoliert worden war, ausgeführt. Das Ergebnis einer grösseren Anzahl von Messreihen führt, unter Zugrundelegung des bekannten Zerfallschemas des  $\text{ThC''}$ , für die  $2,62\text{ MeV-Komponente der ThC''-}\gamma\text{-Strahlung}$  zu den Sensibilitätswerten

$$\varepsilon_{2,62\text{ MeV}}^{\text{Pb}} = (1,94 \pm 0,07) \cdot 10^{-2}; \quad \varepsilon_{2,62\text{ MeV}}^{\text{Mess}} = (1,45 \pm 0,05) \cdot 10^{-2}.$$

Der Wert für Messingkathode ist zu vergleichen mit dem von v. DROSTE bestimmten Wert  $\varepsilon_{2,62}^{\text{Mess}} = 1,61 \cdot 10^{-2}$  und dem von NORLING<sup>1)</sup> bestimmten Wert  $(1,76 \pm 0,06) \cdot 10^{-2}$ . Der von NORLING bestimmte Sensibilitätswert für Bleikathode

$$\varepsilon_{2,62\text{ MeV}}^{\text{Pb}} = (2,02 \pm 0,07) \cdot 10^{-2}$$

stimmt mit unserem Wert innerhalb der Fehlergrenze überein.

Der bei unseren Messungen von  $\gamma$ -Zählrohr und  $\text{ThC''}$ -Quelle aufgespannte Raumwinkel wurde aus den geometrischen Daten nach der Formel von NORLING zu  $\alpha = \frac{\Omega}{4\pi} = 0,170$  berechnet; wie Kontrollmessungen zeigen, gibt die Formel von NORLING die Abhängigkeit der Stosszahl vom Abstand Quelle-Zählrohr für *Messingzählrohre* auch noch bei sehr kleinen Abständen gut wieder (Fig. 5).

5. Das Verhältnis der Zählrohrsensibilitäten für die  $0,242 \text{ MeV-}\gamma\text{-Linie des ThB}$  und die  $2,62 \text{ MeV-}\gamma\text{-Linie des ThC''}$ , deren absolute Intensitäten bekannt sind, wurde nach dem Vorgang von v. DROSTE durch eine Analyse der Absorptionskurve der  $\gamma$ -Strahlung des aktiven Thoriumniederschlags ermittelt. Eine  $10 \mu$ -Aluminiumfolie, auf welcher der aktive Thoriumniederschlag gesammelt war, umgeben von Karton zur Absorption der  $\beta$ -Strahlen, diente als Quelle bei der Aufnahme einer Absorptionskurve der durch  $7 \text{ mm Aluminium gefilterten } \gamma\text{-Strahlung des Th (B+C+C'')}$

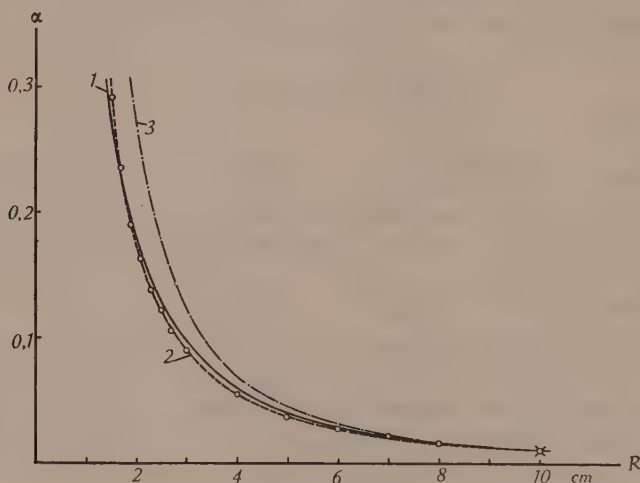


Fig. 5.

Wirksamer Raumwinkel eines  $\gamma$ -Zählrohrs mit Messingkathode in Funktion der Distanz Quelle—Zählrohrachse,  $\left(\alpha = \frac{\Omega}{4\pi}\right)$ .

Zählrohrdaten: Innendurchmesser  $2,3 \text{ cm}$ . Wirksame Drahtlänge  $5,5 \text{ cm}$ .

1: Raumwinkel, berechnet nach NORLING. 2: Gemessene Stosszahl bei Bestrahlung des Zählrohrs mit den  $1,14 \text{ MeV-}\gamma\text{-Strahlen}$  einer im Abstände  $R$  befindlichen

$$\text{Zn}^{65}\text{-Quelle. } 3: f(R) = \frac{\text{const.}}{R^2}.$$

in einer Anordnung, in der praktisch keine Streustrahlung mehr mitregistriert wurde ( $30 \text{ cm}$  langer Bleikanal). Die unter Verwendung von Blei- und Messingzählrohren gemessenen Absorptionskurven lassen sich ohne Willkür in drei Komponenten mit den Absorptionskoeffizienten  $\mu_1 = 7,1 \text{ cm}^{-1} \text{ Pb}$  ( $0,242 \text{ MeV-Linie des ThB}$ ),  $\mu_2 = 1,63 \text{ cm}^{-1} \text{ Pb}$  ( $\text{ThC''-Linien bei } 0,507 \text{ MeV und } 0,580 \text{ MeV}$ ) und  $\mu_3 = 0,47 \text{ cm}^{-1} \text{ Pb}$  ( $\text{ThC''-}2,62 \text{ MeV-Linie}$ ) zerlegen

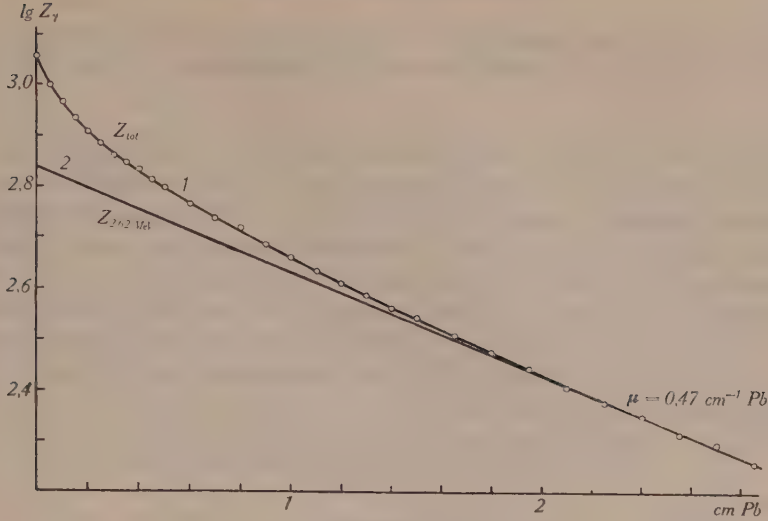


Fig. 6a.

Absorption der  $\gamma$ -Strahlung des Th (B+C+C'') in Blei.

Messung mit Bleizählrohr.

1: gemessene Stosszahl  $Z_{\text{tot}}$  2: Abs.-Kurve der 2,62 MeV- $\gamma$ -Strahlung des ThC''.

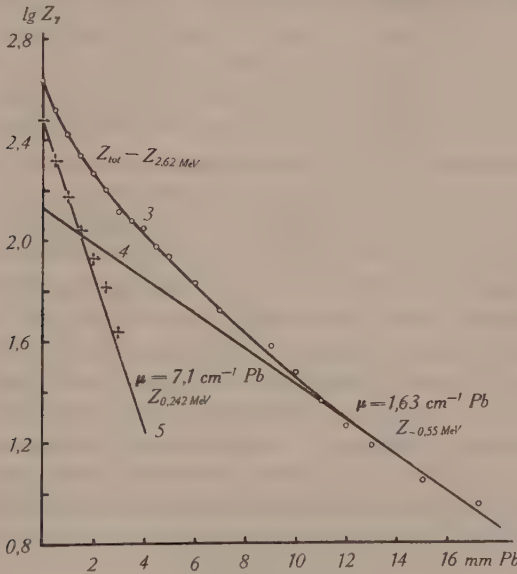


Fig. 6b.

3: Abs.-Kurve nach Abzug des Beitrags der 2,62 MeV-Komponente.

4: Beitrag der 0,507 MeV- u. der 0,580 MeV-Komponenten der ThC''- $\gamma$ -Strahlung.

5: Restintensität: Abs.-Kurve der 0,242 MeV- $\gamma$ -Strahlung des ThB.

$$Z_{2,62 \text{ MeV}}^0 : Z_{0,55 \text{ MeV}}^0 : Z_{0,242 \text{ MeV}}^0 = 100 : 25 : 90.$$



(Fig. 6). Für ein Bleizählrohr verhalten sich die Stosszahlen, extrapoliert auf Absorberdicke (inkl. Zählrohrwand) Null, wie

$$Z_{2,62 \text{ MeV}} : Z_{0,55 \text{ MeV}} : Z_{0,24 \text{ MeV}} = 100 : 25 : 90.$$

Pro Zerfall des ThC'' wird praktisch genau ein Quant der 2,62 MeV-Linie ausgesandt, also 0,35 Quanten pro Zerfall des ThB. Die absolute Intensität der 0,242 MeV-Linie des ThB ist ebenfalls praktisch gleich Eins, ihre Konversionswahrscheinlichkeit nach FLAMMERSFELD<sup>15)</sup> 28%. Die Intensität der 0,275 MeV-Linie des ThC'' beträgt nach ARNOULT<sup>1)</sup> nur ca. 0,03 Quanten pro Zerfall ThB.

Mit diesen Daten berechnet sich das Verhältnis der Zählrohrsensibilitäten für die 0,24 MeV-Strahlung des ThB und die 2,62 MeV-Strahlung des ThC'' zu

$$\varepsilon_{0,242 \text{ MeV}}^{\text{Pb}} : \varepsilon_{2,62 \text{ MeV}}^{\text{Pb}} = \frac{0,35}{(0,72 + 0,03)} \cdot 0,90_2 = 0,42$$

und damit

$$\varepsilon_{0,242 \text{ MeV}}^{\text{Pb}} = 0,42 \cdot 1,94 \cdot 10^{-2} = 8,2 \cdot 10^{-3}$$

in Übereinstimmung mit dem für die 0,247 MeV-Komponente des In<sup>112</sup> bestimmten Wert.

6. In Fig. 3 sind neben den so bestimmten Sensibilitätswerten noch Messpunkte für die 1,8 MeV- $\gamma$ -Strahlung des Al<sup>28</sup> und die 2,2 MeV- $\gamma$ -Strahlung des Mn<sup>56</sup> eingetragen. Die Relativwerte der Sensibilitäten für diese Quantenenergien, bezogen auf den Wert der Sensibilität für die 2,62 MeV-ThC''-Strahlung, sind einer Arbeit von DUNWORTH<sup>17)</sup> entnommen; die entsprechenden Punkte in Fig. 3 sind unter Verwendung des von uns für die 2,62 MeV-Strahlung bestimmten Sensibilitätswerts eingezeichnet.

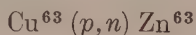
Die empirische Kurve der Fig. 1, welche die Sensibilität eines Messingzählrohrs in Funktion der Quantenenergie im Intervall 0,17 MeV bis 2,6 MeV wiedergibt, stimmt bis zu einer Energie von etwa 1 MeV mit der bei 0,51 MeV angeschlossenen v. DROSTESchen Kurve überein, steigt dann aber mit wachsender Energie rascher an, wie es zu erwarten war. In Fig. 3 ist diese empirische Sensibilitätskurve nochmals eingezeichnet, zusammen mit den nach Fig. 2 berechneten Sensibilitätskurven für Blei- und Aluminiumzählrohre. Die von YUKAWA und SAKATA<sup>18)</sup> für ein Aluminiumzählrohr berechnete Sensibilitätskurve stimmt oberhalb 0,5 MeV mit unserer entsprechenden Kurve der Fig. 3 sehr gut überein\*). Auch die von BLEULER und ZÜNTI<sup>14)</sup> für einzelne Energie-

\*) Um numerische Übereinstimmung zu erhalten, ist der konstante Faktor  $\delta$ , der bei der Rechnung von YUKAWA und SAKATA unbestimmt bleibt, mit  $\delta_{\text{Al}} = 0,61$  anzunehmen.

werte (0,5 MeV, 1,5 MeV und 2,62 MeV) genau berechneten Sensibilitäten sind in sehr befriedigender Übereinstimmung mit den Werten der Fig. 3.

Die Kenntnis des Verhältnisses  $\frac{\varepsilon_{\text{Pb}}}{\varepsilon_{\text{Mess}}}$  als Funktion der Quantenenergie hat sich bei vielen Untersuchungen als sehr nützlich erwiesen. So kann etwa der Vergleich der mit einem Bleizählrohr und einem Messingzählrohr registrierten Stosszahlen, welcher ja auch dann noch leicht auszuführen ist, wenn nur sehr schwache Intensitäten zur Verfügung stehen, zur ersten Orientierung über eine noch unbekannte  $\gamma$ -Strahlung dienen.

Nehmen wir als Beispiel die bisher noch kaum untersuchte  $\gamma$ -Strahlung des  $38,3 \text{ min-Zn}^{63}$ , von dem wir durch Bestrahlung von Cu mit 7 MeV Protonen im Cyclotron durch die Reaktion



Aktivitäten bis zu 100 m Curie herstellen konnten. Die intensivste Komponente der  $\text{Zn}^{63}$ - $\gamma$ -Strahlung ist offensichtlich die 0,51 MeV-Vernichtungsstrahlung der bei der radioaktiven Umwandlung ausgesandten Positronen. Messungen der Reichweite der Sekundärelektronen nach der bekannten Methode von BORHE zeigten, dass überdies noch eine harte Kern- $\gamma$ -Strahlung von 1,9 MeV Quantenenergie vorhanden ist. Der Vergleich der Stosszahlen von Blei- und Messingzählrohren gleicher Dimension ergab für die ungefilterte  $\gamma$ -Strahlung des  $\text{Zn}^{63}$  den Wert  $\frac{\varepsilon_{\text{Pb}}}{\varepsilon_{\text{Mess}}} = 3,3$ , entsprechend dem Überwiegen der 0,51 MeV-Vernichtungsstrahlung; für die durch 6,0 cm Pb gefilterte  $\gamma$ -Strahlung ergab sich  $\frac{\varepsilon_{\text{Pb}}}{\varepsilon_{\text{Mess}}} = 1,6$ , was nach Fig. 2 einer Quantenenergie von 1,1 MeV entspricht. Demnach war also noch das Vorhandensein einer dritten Komponente von etwa 1 MeV zu erwarten. In der Tat konnte mit dem magnetischen Spektrographen die schwache K-Konversionslinie einer 0,96 MeV- $\gamma$ -Strahlung nachgewiesen werden. Die Analyse der mit Bleifiltern bestimmten Absorptionskurve der  $\text{Zn}^{63}$ - $\gamma$ -Strahlung (Positronen in Blei absorbiert) zeigt ebenfalls das Vorhandensein dieser drei Komponenten, wobei sich die mit einem *Messingzählrohr* gemessenen Stosszahlen, extrapoliert auf Absorberdicke Null, wie

$$Z_{0,51} : Z_{0,96} : Z_{1,9} = 100 : 8,9 : 8,0 \text{ (Messingzählrohr),}$$

die mit einem *Bleizählrohr* gemessenen Stosszahlen sich wie

$$Z_{0,51} : Z_{0,96} : Z_{1,9} = 100 : 5,8 : 3,2 \text{ (Bleizählrohr)}$$

verhalten. Um aus diesen Werten die *wahren Intensitäten* der drei  $\gamma$ -Linien des  $\text{Zn}^{63}$  zu bestimmen, müssen wir auf Fig. 3 zurückgreifen, denn erst die Quotienten aus Stosszahl und Zählrohrsensibilität ergeben die wahren relativen Intensitäten. Die mit Messingzählrohr und die mit Bleizählrohr bestimmten relativen Stosszahlen, untereinander stark verschieden, ergeben nach Division durch die entsprechenden Zählrohrsensibilitäten innerhalb der Messgenauigkeit die gleichen Intensitätswerte

$$N_{0,51} : N_{0,96} : N_{1,9} = 100 : 4,4 : 1,5.$$

Da (bei Vernachlässigung des seltenen K-Einfangs, der mit der Positronenemission des  $\text{Zn}^{63}$  konkurriert) die absolute Intensität der Vernichtungsstrahlung zwei Quanten pro Zerfall beträgt,

$$N_{0,51 \text{ MeV}} = 2,0 \text{ Quanten/Zerfall,}$$

so sind die absoluten Intensitäten der beiden vom angeregten  $\text{Cu}^{63}$  emittierten Linien demnach

$$N_{0,96 \text{ MeV}} = 0,09 \text{ Quanten/Zerfall}$$

$$N_{1,9 \text{ MeV}} = 0,03 \text{ „}$$

Über die Untersuchung der radioaktiven Umwandlung des  $\text{Zn}^{63}$  wird später ausführlicher berichtet werden. Die obigen Angaben mögen als Beispiel für die Verwendung der Daten der Figuren 2 und 3 dienen.

Physikalisches Institut der E.T.H. Zürich.

#### Literatur.

- <sup>1)</sup> F. NORLING, Arkiv för Math. och Fysik **27**, 1941.
- <sup>2)</sup> H. BRADT, Helv. Phys. Acta **17**, 59, 1944.
- <sup>3)</sup> G. J. SIZOO und D. J. COUMOU, Physica **3**, 921, 1936.
- <sup>4)</sup> G. v. DROSTE, Zs. für Physik **100**, 529, 1936.
- <sup>5)</sup> W. GENTNER, Journ. de phys. **6**, 274, 1935.
- <sup>6)</sup> J. READ, Proc. Roy. Soc. **152**, 402, 1935.
- <sup>7)</sup> W. BOTHE, Handbuch der Physik XXII<sub>2</sub>, S. 36 und S. 43.
- <sup>8)</sup> H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **18**, 256, 1945.
- <sup>9)</sup> J. L. LAWSON und J. M. CORK, Phys. Rev. **57**, 982, 1940.
- <sup>10)</sup> H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **18**, 259, 1945.
- <sup>11)</sup> H. BRADT und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **18**, 405, 1945.
- <sup>12)</sup> M. DEUTSCH, A. ROBERTS und L. G. ELLIOT, Phys. Rev. **61**, 389, 1942.
- <sup>13)</sup> C. T. HIBDON, M. L. POOL und J. D. KURBATOV, Phys. Rev. **57**, 289, 1945.
- <sup>14)</sup> E. BLEULER und W. ZÜNTI, Helv. Phys. Acta (1946).
- <sup>15)</sup> A. FLAMMERSFELD, Zs. für Physik **114**, 227, 1939.
- <sup>16)</sup> R. ARNOULT, Ann. de phys. **12**, 241, 1939.
- <sup>17)</sup> J. V. DUNWORTH, Rev. Sci. Instr. **11**, 167, 1940.
- <sup>18)</sup> H. YUKAWA und S. SAKATA, Sci. Pap. Inst. Chem. Phys. Res. Tokyo **31**, 187, 1937.

# Die Verdampfungsgeschwindigkeit von Eis

von Kurt Tschudin.

(23. II. 1946.)

*Inhalt\*):* Mit einer elektrischen Waage wird die Verdampfungsgeschwindigkeit einer Eisschicht im Vakuum bei verschiedenen Temperaturen bestimmt, wobei die Oberflächentemperatur mit einem feinen Thermoelement gemessen wird. Daraus lässt sich unter Verwendung der gaskinetisch berechneten, maximalen Verdampfungsgeschwindigkeit für jede Versuchstemperatur der Verdampfungskoeffizient ermitteln.

In dem untersuchten Temperaturintervall von  $-85^{\circ}\text{C}$  bis  $-60^{\circ}\text{C}$  ergibt sich für Eis ein von der Temperatur unabhängiger Verdampfungskoeffizient, dessen Wert 0,94 dem theoretischen Maximalwert 1 sehr nahe kommt. Dies steht im Gegensatz zu den von anderer Seite erhaltenen Resultaten an der flüssigen Phase, für die ein Wert von 0,04 gemessen worden ist.

## I. Einleitung.

§ 1. Wasser als eine der verbreitetsten und technisch wichtigsten Substanzen ist in allen Aggregatzuständen eingehend untersucht worden. DORSEY<sup>1)</sup> hat das gesamte Wissen in neuerer Zeit kritisch gesichtet und in einer Monographie verarbeitet. Es ist wohlbekannt, dass das Wasser in mancher Hinsicht im Vergleich zu den übrigen Substanzen ein ganz anomales Verhalten zeigt.

So hat ALTY<sup>2)</sup> mit seinen Mitarbeitern für Wasser eine unerwartet kleine Verdampfungsgeschwindigkeit, d. h. pro Flächen- und Zeiteinheit verdampfende Substanzmenge, gemessen, nachdem es ihm gelungen war, durch eine sinnreiche Methode die erheblichen Schwierigkeiten der Messung zu überwinden. Seine Ergebnisse sind nach ganz anderem Messverfahren von PRÜGER<sup>3)</sup> bestätigt worden. Von beiden wird übereinstimmend gefunden, dass das Verhältnis der tatsächlichen zur gaskinetisch berechneten, maximalen Verdampfungsgeschwindigkeit, welches Verhältnis man den Verdampfungs- oder Kondensationskoeffizienten nennt, nur 0,04 beträgt. Es liegt nahe, diese starke Kondensationsbehinderung Assoziationsphänomenen zuzuschreiben, deren Ursache vielleicht im grossen Dipolmoment der  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle begründet ist.

Mit Assoziationserscheinungen erklären auch BARNES und VIPOND<sup>4)</sup> ihre Versuche über die Sublimationswärme des Eises,

---

\*) Vorläufige Mitteilung s. E. MIESCHER und K. TSCHUDIN, *Helv. Phys. Acta* **18**, 456, 1945.



für die sich bei langsamem und schnellem Wegführen des Dampfes Unterschiede ergaben, die ungefähr dem Betrag der Schmelzwärme gleichkommen. Doch hat MIESCHER<sup>5)</sup> zeigen können, dass zum mindesten dann, wenn die  $\text{H}_2\text{O}$ -Moleküle durch sofortige Kondensation am Zurückkehren zur Eisoberfläche verhindert werden, d. h. bei molekularer Verdampfung, das Eis in nicht assoziierter Form verdampft.

Es ist das Ziel der vorliegenden Arbeit, die Verdampfungsgeschwindigkeit bei molekularer Eisverdampfung für verschiedene Temperaturen zu messen und den Verdampfungskoeffizienten daraus zu berechnen. Im Vergleich zu den bisher ausgeführten Messungen derselben Grösse an anderen Stoffen<sup>6)</sup> bestand die Aufgabe im Falle des Eises darin, eine neuartige Methode auszuarbeiten, die im Temperaturbereich weit unterhalb der Raumtemperatur brauchbar ist.

## II. Methodik.

§ 2. Die Verdampfungsgeschwindigkeit eines Stoffes hängt exponentiell von der Temperatur der verdampfenden Oberfläche ab. Wir bezeichnen die direkt durch Wägung bestimmte, pro  $\text{cm}^2$  Oberfläche und pro sec bei der Temperatur  $T$  verdampfende Menge mit  $G_{\text{exp}}(T)$  ( $\text{g cm}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ ). Damit der wahre Wert  $G_{\text{exp}}$ , der eine den Phasenübergang charakterisierende Grösse ist, gemessen werden kann, muss die Bedingung für „freie“ Verdampfung eingehalten werden, d. h. die Dampfphase muss so rasch entfernt werden, dass durch sie die Teilchen, welche die Oberfläche verlassen, nicht behindert werden. Zu diesem Zwecke muss im Vakuum eine tiefgekühlte Kondensationsfläche so nahe an die verdampfende Substanzschicht herangebracht werden, dass der gegenseitige Abstand klein ist gegen die freie Weglänge im Dampf. Hierdurch wird den Messungen eine obere Grenze gesetzt. Die Oberflächentemperatur  $T$  und damit  $G_{\text{exp}}(T)$  kann durch Änderung der Wärmezufuhr, die für die Verdampfung notwendig ist, variiert werden; wegen des exponentiellen Zusammenhangs muss die Temperatur sehr genau bestimmt werden.

Aus dem Sättigungsdampfdruck  $p_s(T)$ , also einer Grösse, die für das Gleichgewicht gilt, kann, da er die Stosszahl pro Flächeneinheit im gesättigten Dampf bestimmt, ein Maximalwert für die Verdampfungsgeschwindigkeit  $G_{\text{max}}(T)$  berechnet werden, wie schon HERTZ<sup>7)</sup> gezeigt hat. Es gilt:

$$G_{\text{max}} = \sqrt{\frac{M}{2\pi R}} \frac{p_s}{\sqrt{T}},$$

worin  $M$  = Molekulargewicht und  $R$  = Gaskonstante. Man nimmt dabei an, dass im Gleichgewicht die Verdampfung in gleicher Weise wie im Nichtgleichgewichtsfall erfolgt, und erhält die Geschwindigkeit der Verdampfung für den Fall, dass keine Reflexion der stossenden Moleküle auftritt. Wenn hingegen im Gleichgewicht nur der Bruchteil  $\alpha$  der stossenden Moleküle kondensiert, also der Bruchteil  $1-\alpha$  reflektiert wird, so ist  $G_{\text{exp}} = \alpha G_{\text{max}}$ . Man findet also  $\alpha$ , eine Zahl, für die sich der Name „Verdampfungskoeffizient“ (s. VOLMER<sup>6)</sup>) eingebürgert hat:

$$\alpha = \frac{G_{\text{exp}}(T)}{G_{\text{max}}(T)}.$$

Es ist zu beachten, dass  $\alpha$ , das eine Funktion der Temperatur sein kann, wie  $G_{\text{exp}}(T)$  eine für jeden Stoff spezifische Grösse darstellt, deren theoretische Bedeutung in neuerer Zeit von HERZFELD<sup>8)</sup>, wenn auch nur in allgemeinen Zügen, diskutiert worden ist.

### III. Apparatur.

§ 3. Die zur Bestimmung der Verdampfungsgeschwindigkeit von Eis verwendete *Vakuumapparatur* ist in ihren wichtigsten Teilen in Fig. 1 wiedergegeben. In der hochevakuierten Glasapparatur  $G$  ist am verlängerten Zeiger  $H$  der Waage der metallene Substanzträger  $E$  für die dünne Eisschicht angebracht. Im Abstände von 3 mm über der Eisschicht befindet sich die mit flüssiger Luft gekühlte Kondensationsfläche  $K$  aus Glas, 2 cm darunter eine Heizspirale  $W$ , welche die Versuchstemperatur im gewünschten Masse zu erhöhen gestattet.

Die Erzeugung des Vakuums ( $10^{-5}$  mm-Hg) erfolgt mit einer Leybold'schen Quecksilberdiffusionspumpe Modell  $E$  und einer mit flüssiger Luft gekühlten Ausfrieretasche. Mit einem Kompressionsmanometer nach Moser wird das Vakuum kontrolliert. Die Dichtungen  $D_1$  und  $D_2$  bestehen aus Apiezon-Q.

§ 4. Die Menge des verdampfenden Eises wird mit einer elektrischen *Vakuumwaage* in Form eines Drehspulmesswerkes\*) gemessen, wobei der Zeiger  $H$  das zu wägende Gewicht trägt. Wie bei den von MIESCHER<sup>5)</sup> und METZGER<sup>9)</sup> benützten Waagen, bildet der von aussen regelbare Messtrom der Drehspule, mit dem die Spitze des Zeigers ständig auf die Nullmarke  $Z$  eingespielt werden kann, das Mass für das Gewicht. Zu beiden Seiten der Drehspule  $S$  sind auf der Achse je zwei Spiralfedern für die Zuleitungen zur

\*) Von der Firma Trüb-Täuber & Co., Zürich.

Drehspule und zum Thermoelement angebracht. Diese zwei Federnpaare und die Gegengewichte  $G_1$  und  $G_2$  bestimmen die Nullage des Substanzträgers  $E$ . Das Direktionsmoment der Federn beträgt insgesamt  $24 \text{ dyn cm Grad}^{-1}$ . Da die feinen Zeigerspitzen bei  $Z$  sich mit einer Genauigkeit von  $0,1 \text{ mm}$  einstellen lassen, was bei der Länge des Waagarmes von  $12 \text{ cm}$  einem Winkel von  $0,05^\circ$  entspricht, so resultiert für die Gewichtsbestimmung der Eis-

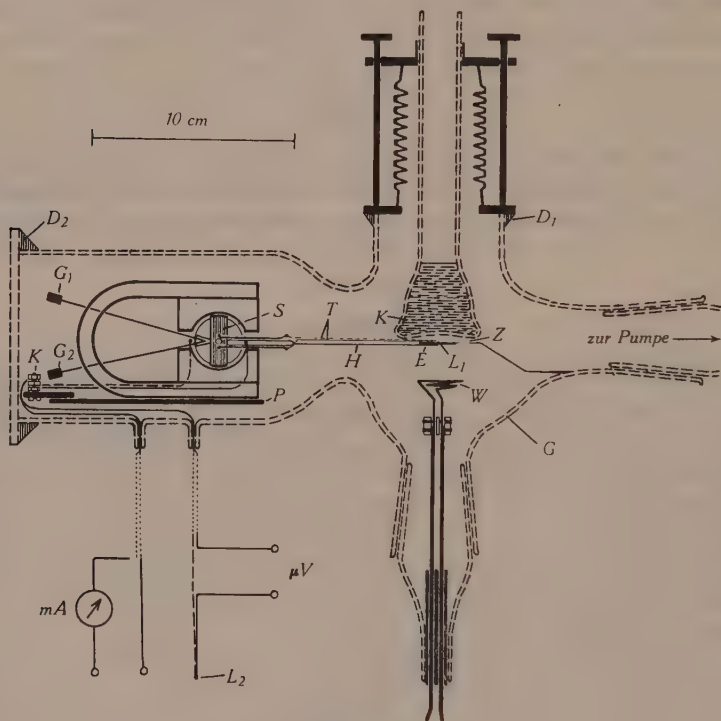


Fig. 1.

Vakuumapparatur.

schicht eine Genauigkeit von  $\frac{0,05 \cdot 24}{12} \text{ dyn} = 0,1 \text{ mg}^*$ . Die Stromempfindlichkeit der Waage beträgt  $3,4 \text{ mg/mA}$ .

§ 5. *Thermoelement.* Für die besonders heikle Messung der Oberflächentemperatur des Eises wurden feine Kupfer-Konstantan-Thermoelemente aus  $0,05 \text{ mm}$  dicken, emaillierten Drähten hergestellt. Bestreicht man die mit Schmirgelpapier blank gemachten und nachher gut verdrehten Drahtenden mit einer Spur zinnhaltiger Lötpaste und erhitzt sie in der Flamme, so entstehen Lötstellen, deren Durchmesser unter  $0,1 \text{ mm}$  liegen.

Die erste Lötstelle  $L_1$  befindet sich in der Eisschicht auf  $E$  (vgl. Fig. 2), die zweite,  $L_2$ , in einem Thermostaten ausserhalb der Glasapparatur.

Sollen keine störenden elektromotorischen Kräfte auftreten, so muss dafür gesorgt werden, dass die Übergangsstellen zwischen den Thermoelementdrähten und den bronzenen Spiralfedern  $A_1$  und  $A_2$ , resp.  $B_1$  und  $B_2$ , auf gleicher Temperatur sind (vgl. Fig. 2). Diese Temperaturgleichheit kann erstens durch die Wärmeentwicklung in der benachbarten Drehspule und zweitens durch die Wärmeleitung der Thermoelementdrähte gestört werden.

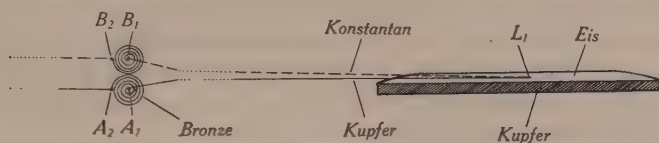


Fig. 2.  
Thermoelement und Eisschicht.

Es zeigte sich experimentell, dass der Einfluss der Joule'schen Wärme der Drehspule auf die Temperaturmessung vernachlässigt werden kann, wenn der Messtrom innerhalb der Grenzen  $\pm 20$  mA bleibt.

Zur Unterdrückung der zweiten Störung wurden die Thermoelementdrähte zwischen  $L_1$  und  $A_1$ , resp. zwischen  $L_1$  und  $B_1$ , so lang ( $> 12$  cm) gewählt, dass der nach der Theorie der Wärmeleitung berechnete Fehler in der Temperaturmessung sicher vernachlässigt werden kann. Versuche bestätigten, dass eine Vergrößerung der Drahtlänge von 12 auf 20 cm ohne messbaren Einfluss auf die Temperatur ist.

Die Eichung des Kupfer-Konstantan-Thermoelementes bedarf grosser Sorgfalt, beeinflusst doch ein Temperaturunterschied von  $1^\circ\text{C}$  die Verdampfungsgeschwindigkeit wegen des exponentiellen Funktionsverlaufs im ganzen untersuchten Temperaturbereich um ca. 15%.

Am besten wird so verfahren, wie es von Scott<sup>10)</sup> empfohlen wird. Danach genügt es, die elektromotorische Kraft des zu eichenden Thermoelementes für wenige Temperaturwerte zu messen und die über grosse Temperaturintervalle nahezu konstante, relative Abweichung von den von Scott angegebenen Tabellenwerten zu berechnen.

In unserem Fall wird die Eichung in der Hauptsache mit einer Kältemischung aus  $\text{CO}_2$ -Alkohol bei Temperaturen zwischen  $-80^\circ$  und  $-40^\circ$  und unter Verwendung eines amtlich geeichten Wider-



stands- und eines Präzisions-Pentan-Thermometers ausgeführt. Die Ermittlung der elektromotorischen Kraft erfolgt wie bei den Eisversuchen mit einem Cambridge-Kompensationsapparat in Verbindung mit einem Weston-Normalelement und einem Spiegelgalvanometer auf ein Mikrovolt genau. Die mittlere Abweichung der Scottschen Tabellenwerte von unseren Eichwerten beträgt 4,3%.

§ 6. Wird die Spirale *W* nicht geheizt, so stellt sich die tiefste Temperatur der Eisschicht ein. Diese wird durch den Strahlungsaustausch mit der Umgebung und durch den Wärmeverbrauch infolge der Eisverdampfung bestimmt. Sie lässt sich leicht abschätzen und hängt etwas ab vom Absorptionsvermögen der Substanzträger, das je nach Material und Oberflächenbeschaffenheit (blank oder oxydiert) verschieden gross ist. In Übereinstimmung mit den Versuchen findet man  $-85^{\circ}\text{C}$  bis  $-80^{\circ}\text{C}$ .

Die obere Grenze für die Verdampfungstemperatur errechnet sich aus der Bedingung der freien Verdampfung (vgl. § 2) zu  $-60^{\circ}\text{C}$ . Sie wird für eine Heizleistung von 4 Watt erreicht. Die Verdampfung erfolgt hier 45mal rascher als an der unteren Grenze.

#### IV. Messverfahren und Auswertung.

§ 7. Der kreisrunde Substanzträger aus Messing oder Kupfer von wenigen  $\text{cm}^2$  Fläche wird auf Schmirgelpapier poliert und in der Flamme oxydiert, um eine gute Benetzung durch das Wasser zu gewährleisten. Nach der Befestigung des Plättchens am Hebelarm der Waage wird eine einige Zehntelmillimeter dicke Wasserschicht aufgebracht und die Waage in die Glasapparatur geschoben. Die Zuführungen für Thermoelement und Drehspule werden an den Klemmen *K* (Fig. 1) angeschlossen. Mit den Gegengewichten  $G_1$  und  $G_2$  wird die Waage so justiert, dass sie bei ungefähr 50 mA einspielt, alsdann wird die Apparatur verschlossen und zunächst mit der Vorkuumpumpe ausgepumpt. Dabei kühlt sich das Wasser bis auf einige Grade unter Null ab und gefriert plötzlich. Zuweilen entstehen Eisauswüchse von mehreren mm Länge; in solchen Fällen wird die Eisbildung wiederholt. So kann man meist nicht nur eine glatte, sondern auch durchsichtige Schicht erreichen. Nach der Eisbildung wird der Hahn zur Hochvakuumpumpe geöffnet und die Auffangfläche mit flüssiger Luft beschickt, worauf sich nach wenigen Minuten der stationäre Zustand ausbildet.

§ 8. Im Ausmasse wie das Gewicht der Eisschicht zufolge Verdampfens abnimmt, wird der Messtrom der Vakuumwaage

durch Regulierung von Hand geändert, sodass die Waage ständig einspielt. Jede Minute wird am mA-Meter die Grösse des Messstromes abgelesen. Ebenso wird in regelmässigen Zeitabständen die elektromotorische Kraft des Thermoelementes bestimmt. Auf diese Weise entsteht eine Messreihe, aus der  $G_{\text{exp}}$  und  $T$  erhalten werden. Durch passende Wahl der Heizleistung kann gemäss § 6 die gewünschte Oberflächentemperatur eingestellt werden. Mit ein

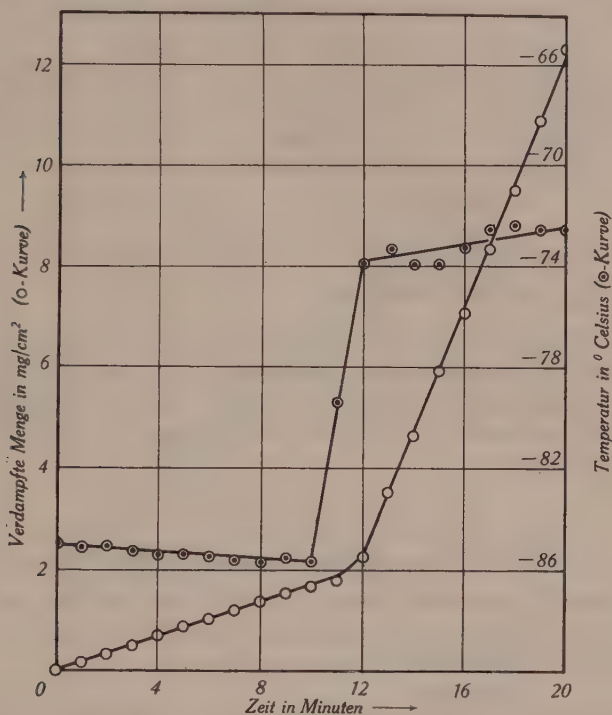


Fig. 3.

Eisverdampfungs- und Temperaturkurve.

und derselben Schicht können so Messungen bei verschiedenen Temperaturen ausgeführt werden. Ein Beispiel nach der Auswertung zeigt Fig. 3.

Während des Verdampfens wird die Eismenge notwendigerweise kleiner. Dies äussert sich nicht nur in einer Abnahme der Eisdicke, sondern auch in einer langsamen Abnahme der Eisfläche, weil die Eisschicht am Rande dünner ist (vgl. Fig. 2). Der Versuch wird abgebrochen, wenn die Abnahme der Fläche 20% übersteigt. Während der Durchführung einer Messreihe muss darauf geachtet

werden, dass die Waage keine merklichen Ausschläge aus der Nulllage macht, da sonst die stationären Verhältnisse gestört werden. Doch gelingt dies mit einiger Übung im Handhaben des Kompenstationsstromes leicht.

§ 9. Fig. 3 stellt als Beispiel eine Versuchsreihe dar. Die eine der beiden Kurven zeigt die verdampfte Eismenge in  $\text{mg}/\text{cm}^2$ , die andere den dazu gehörigen Temperaturverlauf. Die Verdampfungskurve ist bereits auf  $1 \text{ cm}^2$  der Eisfläche reduziert, die geringe Abnahme der Eisfläche von  $3,7$  auf  $3,4 \text{ cm}^2$  während des Versuches ist also eliminiert. Zur Auswertung werden nach Möglichkeit nur solche Zeitintervalle herangezogen, für welche die Temperaturschwankungen  $1^\circ$  nicht überschreiten. So erhalten wir für das Intervall von 0 bis 10 min (Heizleistung = 0 Watt):

$$G_{\text{exp}} = 0,00280 \text{ mg cm}^{-2} \text{ s}^{-1}, \quad t = -85,4^\circ \text{ C},$$

für das Intervall von 13 bis 20 min (Heizleistung = 2 Watt):

$$G_{\text{exp}} = 0,0205 \text{ mg cm}^{-2} \text{ s}^{-1}, \quad t = -73,1^\circ \text{ C}.$$

Zur Berechnung der zugehörigen  $G_{\text{max}}$ -Werte dient die Hertzsche Formel des § 2. Da nach MIESCHER<sup>5)</sup> Eis im Vakuum monomolekular verdampft, setzen wir für das Molekulargewicht  $M = 18,016$  und erhalten die Verdampfungsgeschwindigkeit  $G_{\text{max}}$  gemäss der Formel:

$$G_{\text{max}} = 247,6 \frac{p_s}{\sqrt{T}} \text{ mg cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$$

(Sättigungsdruck  $p_s$  in mm-Hg).

Zu jeder Versuchstemperatur  $T$  berechnet sich der zugehörige Dampfdruck nach der von DORSEY<sup>1)</sup> (p. 598) ausführlich diskutierten WASHBURNschen Formel:

$$\log_{10} p_s = -\frac{2445,5646}{T} + 8,2312 \log_{10} T - 1677,006 \cdot 10^{-5} T$$

$$+ 120514 \cdot 10^{-10} T^2 - 6,757169$$

( $p_s$  in mm-Hg,  $T = (273,1 + t^\circ \text{ C})^\circ \text{ K}$ ).

Die Genauigkeit der aus dieser Formel bestimmten Dampfdruckwerte genügt vollauf, weichen sie doch von den von WEBER<sup>11)</sup> mit grösster Sorgfalt gemessenen Werten höchstens um einige  $\frac{0}{100}$  ab. Für die oberen Temperaturen reicht übrigens die Genauigkeit der von DORSEY auf p. 600/601 tabellierten Werte aus.

Für die Temperaturen der Fig. 3 seien die  $G_{\text{max}}$ -Werte mit den entsprechenden Verdampfungskoeffizienten angeführt:

$$t = -85,4^\circ \text{ C}, \quad G_{\text{max}} = 0,00289 \text{ mg cm}^{-2} \text{ s}^{-1}, \quad \alpha = 0,968$$

$$t = -73,1^\circ \text{ C}, \quad G_{\text{max}} = 0,0212 \text{ mg cm}^{-2} \text{ s}^{-1}, \quad \alpha = 0,967$$

## V. Ergebnisse.

§ 10. In Tabelle 1 sind die Ergebnisse aller Versuchsreihen zusammengestellt und ausgewertet. Aus den Erläuterungen des § 9 geht die Bedeutung der einzelnen Spalten hervor.

Die mit \* bezeichneten Daten beziehen sich auf die Versuche mit einer 3,8 cm<sup>2</sup> grossen und 0,2 mm dicken Eisunterlage aus Messing, die übrigen auf diejenigen mit einer 1,00 cm<sup>2</sup> grossen und 0,4 mm dicken Kupferunterlage. Die Abweichung der beiden

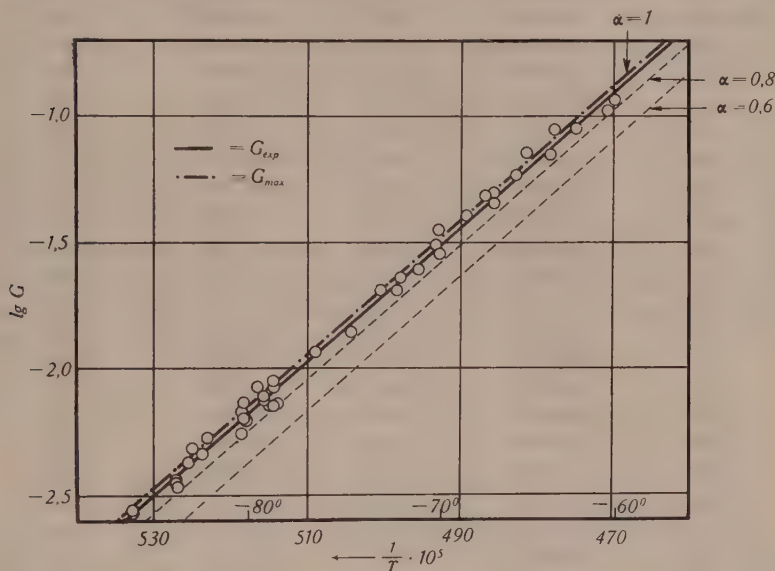


Fig. 4.

Verdampfungsgeschwindigkeit von Eis.

zu den verschiedenen Substanzträgern gehörenden Mittelwerte des Verdampfungskoeffizienten  $\alpha$  liegt innerhalb der Fehlergrenzen des gesamten Mittelwertes. Letzterer beträgt:

$$\alpha = 0,942 \pm 0,012.$$

Bemerkenswert ist die Tatsache, dass  $\alpha$  im untersuchten Temperaturbereich temperaturunabhängig ist. Dies erkennt man auch aus Fig. 4, in der als Abszissen die Werte für  $\frac{1}{T}$  und als Ordinaten die Logarithmen der Verdampfungsgeschwindigkeiten  $G_{exp}$  aufgetragen sind. Die ausgezogene Kurve, welche die Messpunkte verbindet, verläuft parallel zu den zu  $\alpha = 1,0$ ,  $\alpha = 0,8$  und  $\alpha = 0,6$  gehörenden Kurven, deren Ordinaten die berechneten Werte



Tabelle 1.

Temp. ° C	$G_{\text{exp}}$ mg cm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup>	$p_s$ mm-Hg · 10 <sup>3</sup>	$G_{\text{max}}$ mg cm <sup>-2</sup> s <sup>-1</sup>	$\alpha$
* - 85,4	0,00280	0,160	0,00289	0,968
* - 85,4	0,00277	0,160	0,00289	0,958
* - 83,4	0,00368	0,226	0,00406	0,907
- 83,4	0,00360	0,226	0,00406	0,887
* - 83,3	0,00343	0,230	0,00413	0,831
* - 82,8	0,00430	0,251	0,00450	0,956
* - 82,6	0,00485	0,259	0,00465	1,043
- 82,5	0,00470	0,264	0,00473	0,994
* - 82,2	0,00462	0,278	0,00498	0,926
- 81,9	0,00538	0,292	0,00523	1,029
- 80,3	0,00693	0,382	0,00681	1,018
- 80,3	0,00558	0,382	0,00681	0,820
- 80,2	0,00743	0,388	0,00692	1,073
- 80,2	0,00635	0,388	0,00692	0,918
- 80,1	0,00625	0,394	0,00705	0,887
- 79,5	0,00863	0,436	0,00776	1,112
- 79,2	0,00758	0,459	0,00816	0,929
- 79,2	0,00788	0,459	0,00816	0,966
- 78,9	0,00723	0,482	0,00854	0,846
- 78,7	0,00719	0,498	0,00882	0,817
- 78,7	0,00900	0,498	0,00882	1,020
- 78,7	0,00863	0,498	0,00882	0,979
- 78,5	0,00735	0,515	0,00913	0,806
- 76,6	0,0117	0,698	0,0123	0,952
* - 74,7	0,0140	0,945	0,0166	0,843
* - 73,1	0,0205	1,210	0,0212	0,967
- 72,2	0,0257	1,390	0,0242	1,060
- 72,0	0,0230	1,429	0,0249	0,923
- 71,1	0,0248	1,644	0,0286	0,871
* - 70,1	0,0312	1,913	0,0332	0,940
- 70,0	0,0357	1,940	0,0337	1,060
- 69,9	0,0287	1,967	0,0342	0,838
- 68,5	0,0408	2,42	0,0418	0,977
* - 67,4	0,0493	2,85	0,0492	1,003
- 66,9	0,0500	3,07	0,0528	0,943
- 66,9	0,0452	3,07	0,0528	0,855
- 65,8	0,0592	3,60	0,0619	0,957
- 65,1	0,0727	3,97	0,0681	1,073
- 63,8	0,0718	4,77	0,0815	0,882
- 63,6	0,0878	4,91	0,0840	1,044
* - 62,4	0,0895	5,81	0,0991	0,904
- 60,5	0,107	7,55	0,128	0,839
- 60,0	0,119	8,06	0,137	0,868

$\alpha \cdot G_{\max}$  sind. Für unser Temperaturintervall sind die Abweichungen der Kurven von der Geraden unmerklich.

Der oben angegebene mittlere Fehler für  $\alpha$  von 1% enthält die systematischen Fehler bei der Eichung der Waage, der Ausmessung der Eisfläche und der Temperatureichung noch nicht. Allerdings fallen die ersten zwei Fehler, die zusammen weniger als 1% ausmachen, neben dem letzteren nicht ins Gewicht; denn die Ungenauigkeit bei der Temperatureichung ( $0,3^\circ$ ) liefert für die Verdampfungsgeschwindigkeit (vgl. § 5) und damit für den Verdampfungskoeffizienten einen Fehler von 5%. Damit erhalten wir für den Verdampfungs- oder Kondensationskoeffizienten:

$$\alpha = 0,94 \pm 0,06.$$

Mit wachsender Temperatur wird infolge der rascheren Verdampfung der vertikale Temperaturgradient in der Eisschicht grösser, d. h. es vergrößert sich der Unterschied zwischen der gemessenen und der wahren Oberflächentemperatur. Tabelle 2 enthält Wärmestrom und Temperaturgradient, wie sie sich aus der Verdampfungsgeschwindigkeit und der Verdampfungswärme, sowie der Wärmeleitfähigkeit des Eises berechnen lassen.

Tabelle 2.

$t \text{ } ^\circ\text{C}$	−85	−80	−75	−70	−65	−60
$\text{cal cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$	0,002	0,004	0,010	0,022	0,044	0,087
$\text{Grad/cm}$	0,3	0,8	1,8	4	8	16
$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} \%$	0	0	0	1	2	4

Da das Thermoelement in der Regel höchstens 1 bis 2 Zehntel-millimeter unter der Eisoberfläche liegt, ergeben sich so Temperaturdifferenzen zwischen  $0,005^\circ$  (bei  $-85^\circ\text{C}$ ) und  $0,24^\circ$  (bei  $-60^\circ\text{C}$ ). Die hieraus berechneten prozentualen Fehler für den Verdampfungskoeffizienten sind am Schluss der Tabelle 2 aufgeführt. Sie zeigen, dass am oberen Ende unseres Temperaturbereiches die Verdampfungskoeffizienten um einige Prozent vergrößert werden müssten, womit die im Mittel etwas kleineren  $\alpha$ -Werte für die höheren Temperaturen der Tabelle 1 erklärt werden können.

§ 11. Das Ergebnis der beschriebenen Messungen zeigt, dass an der Grenzfläche Eis–Wasserdampf keine Anomalie im kinetischen Verhalten der Moleküle besteht, wie sie aus den in § 1 genannten, weit schwierigeren Versuchen an der Wasseroberfläche

abgeleitet wird. Allerdings liegt zwischen der höchsten nach unserer Methode erreichbaren Temperatur von  $-60^{\circ}\text{C}$  und dem Schmelzpunkt eine grosse Lücke, die jedoch experimentell nicht leicht auszufüllen sein wird. Die Bedingung für freie Verdampfung liesse sich nicht mehr erfüllen, so dass den aus dem Dampf zurückkehrenden Molekülen wie bei den Messungen am Wasser durch eine Druckmessung Rechnung zu tragen wäre. In diese Lücke fällt das ganze meteorologische Temperaturgebiet mit den interessanten Problemen der Schneemetamorphose<sup>12)</sup>, zu deren Erklärung eine Substanzverschiebung längs der Oberfläche angenommen wird. Nach VOLMERS<sup>6)</sup> zwingenden Überlegungen bedarf ja auch die Deutung der hohen Verdampfungskoeffizienten fester Stoffe derselben Annahme, da die Geschwindigkeit der Ablösung vom starren Kristallgitter wegen des geringen Anteils der „Wachstumsstellen“ an der Oberfläche nur ganz kleine Werte erwarten liesse.

Herrn Prof. Dr. P. HUBER danke ich bestens für die Überlassung der Institutsmittel, ebenso den Herren Prof. Dr. M. FIERZ und Dr. F. METZGER für wertvolle Ratschläge. Zum herzlichsten Dank bin ich Herrn Prof. Dr. E. MIESCHER, unter dessen Leitung die vorliegende Arbeit ausgeführt worden ist, verpflichtet.

Physikalische Anstalt der Universität Basel.

#### Literaturverzeichnis.

<sup>1)</sup> N. E. DORSEY, Properties of ordinary water-substance, Reinhold, New York, 1940.

<sup>2)</sup> T. ALTY und C. A. MACKAY, Proc. Roy. Soc. London A **149**, 104, 1935.

<sup>3)</sup> W. PRÜGER, Zeitschr. f. Phys. **115**, 202, 1940.

<sup>4)</sup> H. T. BARNES und W. S. VIPOND, Phys. Rev. **28**, 453, 1909.

<sup>5)</sup> E. MIESCHER, Helv. Phys. Acta **14**, 507, 1941.

<sup>6)</sup> Vgl. M. VOLMER, Kinetik der Phasenbildung, 1939; ferner T. ALTY, Proc. Roy. Soc. London A **161**, 68, 1937; F. METZGER und E. MIESCHER, Nature **142**, 572, 1938; R. N. HAWARD, Far. Trans. **35**, 1401, 1939; K. NEUMANN, Zeitschr. f. phys. Chem. A **185**, 65, 1939, und A **191**, 284, 1942.

<sup>7)</sup> H. HERTZ, Wied. Ann. d. Phys. **17**, 177, 1882.

<sup>8)</sup> K. F. HERZFELD, Journ. Chem. Phys. **3**, 319, 1935.

<sup>9)</sup> F. METZGER, Helv. Phys. Acta **16**, 32, 1943.

<sup>10)</sup> R. B. SCOTT, in „Temperature, its Measurement and Control in Science and Industry“, Reinhold, New York, 1941, p. 210.

<sup>11)</sup> S. WEBER, Overs. Danske Forh. **459**, 1915.

<sup>12)</sup> M. DE QUERVAIN, Exper. **1**, 207, 1945.

## Zur Theorie der Raketen

von J. Ackeret.

(22. II. 1946.)

Nachdem es gelungen ist, Raketen von grossem Gewicht in grosse Höhen zu senden ( $V_2$ -Geschoss), ist das Interesse (ganz abgesehen von militärischen Gesichtspunkten) an diesem Fortbewegungsprinzip sehr gestiegen. Bietet es doch bei genügender Weiterentwicklung die prinzipielle Möglichkeit der *Raumfahrt* ausserhalb der Atmosphäre. Durch die älteren Untersuchungen, insbesondere von OBERTH<sup>1)</sup>, ist allerdings deutlich geworden, dass die hierfür erforderliche Energie an der äussersten Grenze dessen steht, was mit Hilfe unserer besten *Brennstoffe* erreichbar ist. Es ist verständlich, dass die Erschliessung neuer Energiequellen, wie der *Kernenergie* in technischem Mastab, die Hoffnungen für die Raumfahrt neu belebt hat. Eine Diskussion der Raketentheorie unter dem Gesichtspunkt, dass Energien anderer Grössenordnung als bisher zur Verfügung stehen, dürfte deshalb nicht abwegig sein.

### 1. Die elementare Raketentheorie.

Wir betrachten die Rakete im leeren Raum ohne Einwirkung äusserer Kräfte, wie Schwerkraft usw. Aus dem Raketenkörper werde nach rechts Masse mit einer (zeitlich konstanten) Geschwindigkeit  $w$  relativ zur Rakete ausgestossen. Wir beobachten die Vorgänge von einem System aus, das mit dem Schwerpunkt der Rakete zu Beginn der Bewegung fest verbunden ist.

Die Rakete hat nach einiger Zeit die nach links gerichtete Geschwindigkeit  $u_1$  und die Masse  $m_1$ ; die in einer kleinen Zeit ausgestossene Masse  $dm_2$  die nach rechts gerichtete Geschwindigkeit  $u_2$ .

Nun folgt:

a) aus der Erhaltung der Masse:

$$dm_2 = -dm_1 \quad (1)$$

b) aus dem Impulssatz:

$$d(m_1 \cdot u_1) = dm_2 u_2 \quad (2)$$

c) aus dem Additionstheorem der Geschwindigkeit:

$$u_2 = w - u_1. \quad (3)$$

---

<sup>1)</sup> H. OBERTH, Die Rakete zu den Planetenräumen, München 1923. Ferner: E. SÄNGER, Raketenflugtechnik, München 1933.



Durch Elimination von  $dm_2$  und  $u_2$  erhalten wir:

$$m_1 \cdot du_1 = -dm_1 \cdot w \quad (4)$$

integriert:

$$\lg m_1 = -\frac{u_1}{w} + \text{const.}$$

Die Masse zu Anfang der Bewegung ( $u_1 = 0$ ) sei  $m_1 = M_a$ ; damit erhalten wir die bekannte Raketengleichung:

$$\frac{m_1}{M_a} = e^{-\frac{u_1}{w}}.$$

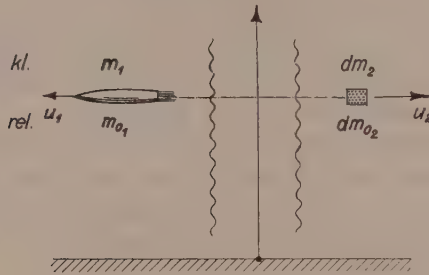


Fig. 1.

Massen und Geschwindigkeiten von Rakete und Strahl.

Nach Ausstossung der gesamten Auspuffmasse sei die Endmasse  $M_e$ , die Raketenendgeschwindigkeit  $U$ ; damit wird

$$\mu = \frac{M_e}{M_a} = e^{-\frac{U}{w}} \quad \text{oder} \quad \frac{U}{w} = \lg \frac{1}{\mu}. \quad (5)$$

Man erhält also für ein Massenverhältnis  $\mu = 1/e = 0,368$  für  $U$  gerade die Ausstosseschwindigkeit  $w$ .

Mit Benzin-Sauerstoffgemischen ist theoretisch ein  $w$  von 4450 m/sec, mit Wasserstoff-Ozon wären 5670 m/sec erreichbar<sup>1)</sup>. Praktisch kann man wohl bestenfalls mit 4000 m/sec rechnen. Man müsste also auf sehr kleine Massenverhältnisse  $M_e/M_a$  gehen, um Raketenendgeschwindigkeiten von 20000 bis 25000 m/sec zu erreichen, die für eine Mondfahrt (mit Landung dort) nötig sind. Solche  $U$  wären aber nur mit wahren Raketenungeheuern erreichbar, die ausserhalb der praktischen Ausführbarkeit liegen.

<sup>1)</sup> SÄNGER l. c. S. 66.

## 2. Relativistische Raketentheorie.

Um auch für sehr viel grössere Ausstossgeschwindigkeiten exakte Formeln zu erhalten, ist relativistisch zu rechnen. Hier muss nun an Stelle der Massenerhaltung der Energiesatz treten, und es müssen die Ruhmassen  $m_{0_1}$  und  $dm_{0_2}$  eingeführt werden (Fig. 1, rel.).

a) Der *Energiesatz* liefert:

$$d \left\{ \frac{m_{0_1} c^2}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} \right\} = - \frac{dm_{0_2} c^2}{\sqrt{1-u_2^2/c^2}} \quad (6)$$

b) der *Impulssatz*:

$$d \left\{ \frac{m_{0_1} u_1}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} \right\} = \frac{dm_{0_2} u_2}{\sqrt{1-u_2^2/c^2}} \quad (7)$$

c) das relativistische *Additionstheorem*:

$$u_2 = \frac{w - u_1}{1 - \frac{u_1 w}{c^2}} \quad (8)$$

wo  $w$  wieder die Bedeutung der Austrittsgeschwindigkeit relativ zur Rakete hat.

Wir gehen nun wiederum so vor, dass wir  $dm_{0_2}$  und  $u_2$  eliminieren:

(6) und (7) geben:

$$dm_{0_1} \frac{c^2}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} + m_{0_1} c^2 d \left\{ \frac{1}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} \right\} = - dm_{0_2} \frac{c^2}{\sqrt{1-u_2^2/c^2}} \quad (9)$$

$$dm_{0_1} \frac{u_1}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} + m_{0_1} \frac{du_1}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} + m_{0_1} u_1 d \left\{ \frac{1}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} \right\} = dm_{0_2} \frac{u_2}{\sqrt{1-u_2^2/c^2}} \quad (10)$$

Durch Anwendung von (8) findet man:

$$\frac{c^2}{\sqrt{1-u_2^2/c^2}} = \frac{c^2 - u_1 w}{\sqrt{1-w^2/c^2} \sqrt{1-u_1^2/c^2}} \quad (11)$$

$$\frac{u_2}{\sqrt{1-u_2^2/c^2}} = \frac{w - u_1}{\sqrt{1-w^2/c^2} \sqrt{1-u_1^2/c^2}} \quad (12)$$

$dm_{0_2}$  eliminiert man aus (9) und (10) mit Hilfe von (11) und (12) und findet:

$$\begin{aligned} m_{0_1} \left\{ \frac{c^2 - u_1 w}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} \right\} du_1 + m_{0_1} w (c^2 - u_1^2) d \left\{ \frac{1}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} \right\} + \\ + dm_{0_1} \frac{w (c^2 - u_1^2)}{\sqrt{1-u_1^2/c^2}} = 0. \end{aligned} \quad (13)$$

\*

Daraus folgt nach kurzer Rechnung:

$$\frac{dm_{0_1}}{m_{0_1}} = - \frac{du_1}{w(1-u_1^2/c^2)} \quad (14)$$

Die Integration gibt:

$$\begin{aligned} \lg m_{0_1} &= - \frac{c^2}{w} \int \frac{du_1}{c^2 - u_1^2} + \text{const} \\ \lg m_{0_1} &= - \frac{c^2}{w} \cdot \frac{1}{2c} \lg \frac{c+u_1}{c-u_1} + \text{const}. \end{aligned} \quad (15)$$

Mit Anfangswert  $m_{0_1} = M_a$  und Endwert  $m_{0_1} = M_e$ ,  $u_1 = U$  ergibt sich die *relativistische Raketengleichung*:

$$\mu = \frac{M_e}{M_a} = \left( \frac{1 - U/c}{1 + U/c} \right)^{c/2w} \quad (16)$$

bzw.

$$\frac{U}{c} = \frac{1 - \mu^{\frac{2w}{c}}}{1 + \mu^{\frac{2w}{c}}} \quad (17)$$

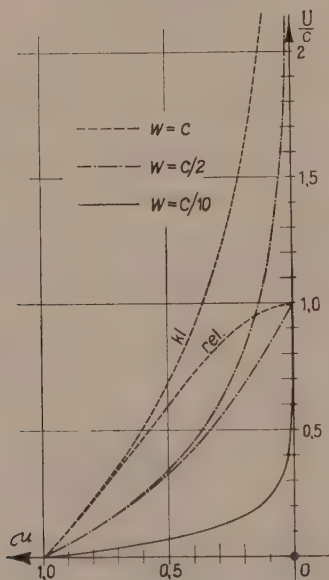


Fig. 2.

Endgeschwindigkeiten der Rakete in Abhängigkeit vom Massenverhältnis für verschiedene Ausstossgeschwindigkeiten (kl = klassisch, rel = relativistisch).

Für  $w = c/10$  ist ein Unterschied praktisch nicht vorhanden.

Man kann sich durch einfachen Grenzübergang überzeugen, dass (17) für  $c \rightarrow \infty$  in (5) übergeht.

In Fig. 2 sind für  $w/c = 1, 1/2, 1/10$  die  $U/c$  über  $\mu$  aufgetragen, zugleich mit der klassischen Näherung.

Es zeigt sich dabei folgendes:

- Für  $w = c$  (Photonen) zeigen sich verhältnismässig früh Unterschiede, während für  $w = c/10$  die klassische Theorie auch für extrem kleine Endmassen völlig ausreichend ist.
- Die Geschwindigkeit  $U$  kann relativistisch natürlich  $c$  nicht übersteigen.

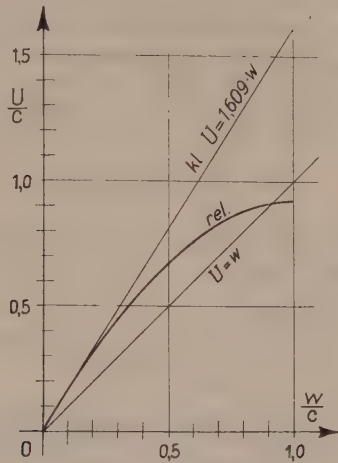


Fig. 3.

Endgeschwindigkeiten der Rakete für das Massenverhältnis 0,2 in Abhängigkeit der Ausstossengeschwindigkeit.

In Fig. 3 ist über  $w/c$  für das feste Massenverhältnis  $\mu = 0,2$ , wie es praktisch wohl ausführbar wäre,  $U/c$  aufgetragen. Klassisch steigt  $U/c$  linear an.

### 3. Über die Verwendung von Kernenergie für den Raketenantrieb.

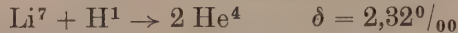
Zur Bestimmung der Auspuffgeschwindigkeit  $w$  denken wir uns die Anordnung folgendermassen:

Die Endmasse  $M_e$  soll einen vorgeschriebenen Wert haben;  $\alpha M_e$  soll die aktive, d. h. Energie liefernde Substanz darstellen, die selbst grösstenteils nicht ausgestossen werden kann. In freie Energie verwandelt und ausgestossen wird der Bruchteil  $\delta \alpha M_e$ , entsprechend den Massendefekten von Ausgangs- und Endzustand. Die Energieproduktion ist also gegeben durch

$$\delta \propto M_e c^2$$



$\delta$  liegt auch bei den stärksten bekannten Kernprozessen unter 1%. (Für die Uranspaltung ergibt sich nur  $0,731^0/_{00}$ , für die Kernreaktion



und für die Reaktion



Neben dieser aktiven Masse soll zusätzlich eine *passive* Masse  $p \cdot M_e$  vorhanden sein und ausgestossen werden.

Die Gesamtmasse beim Start ist also

$$M_e + \delta \alpha M_e + p M_e = M_e(1 + \delta \alpha + p) = M_a.$$

Daraus

$$\mu = \frac{M_e}{M_a} = \frac{1}{1 + \delta \alpha + p}. \quad (18)$$

Der *Energiesatz*, angewendet für ein Koordinatensystem, in dem die Rakete ruht, liefert:

Die kinetische Energie:

$$\frac{M_e p \cdot c^2}{\sqrt{1 - w^2/c^2}} - M_e p c^2$$

wird aufgebracht durch die freiwerdende Energie:

$$M_e \delta \alpha c^2.$$

Somit:

$$p \left\{ \frac{1}{\sqrt{1 - w^2/c^2}} - 1 \right\} = \delta \alpha$$

daraus:

$$\sqrt{1 - w^2/c^2} = \frac{1}{1 + \frac{\delta \alpha}{p}}$$

und

$$w/c = \sqrt{1 - \frac{p^2}{(p + \delta \alpha)^2}}. \quad (19)$$

Die Raketengleichung lautet deshalb:

$$\frac{U}{c} = \frac{1 - \left( \frac{1}{1 + \delta \alpha + p} \right)^2 \sqrt{1 - \frac{p^2}{(p + \delta \alpha)^2}}}{1 + \left( \frac{1}{1 + \delta \alpha + p} \right)^2 \sqrt{1 - \frac{p^2}{(p + \delta \alpha)^2}}}. \quad (20)$$

Es sei nun  $\delta \alpha$  gegeben. Man kann sich fragen, welches  $p$  am günstigsten ist. Vorausgesetzt ist dabei, dass es überhaupt

möglich ist, einer beliebigen kleinen Masse  $p M_e$  die Energie  $\delta \alpha M_e c^2$  mitzuteilen.

Für den (schon recht hoch gewählten) Faktor  $\delta \alpha = 2^0/_{00}$  ergeben sich über  $p$  aufgetragen für  $U/c$  die Werte der Fig. 4, aus welcher man entnimmt, dass  $p \cong 4$  die höchste Geschwindigkeit ergäbe. Für  $p = 0$  ergibt sich ein *endlicher* Wert  $U = 0,002 \cdot c$ , weil die Ruhemasse  $\delta \alpha \cdot M_e$ , in Form von Photonen ( $w = c$ ) ausgestrahlt, einen endlichen Rückstoss macht ( $U/c \sim \delta \alpha$ ).

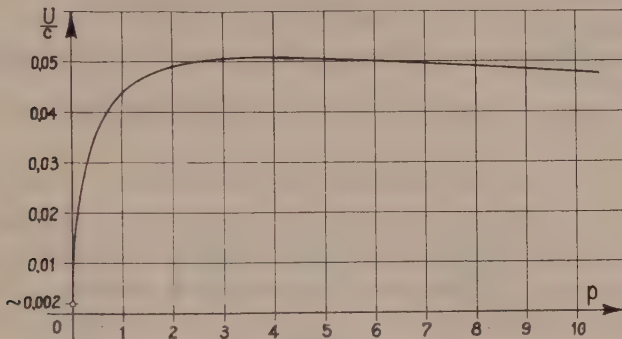


Fig. 4.

Endgeschwindigkeit der Rakete für verschiedene passive Massen.  $\delta \alpha = 2^0/_{00}$ . Die gezeichnete relativistische Kurve ist mit Ausnahme der nächsten Nähe des Nullpunktes von der klassisch gerechneten nicht zu unterscheiden.

*Klassisch* errechnet sich  $U/c$  sehr einfach; es ist

$$\delta \alpha M_e c^2 = \frac{p M_e}{2} w^2$$

$$\frac{w}{c} = \sqrt{\frac{2 \delta \alpha}{p}} \quad (21)$$

und nach Gleichung (5), da

$$\mu = \frac{1}{p+1}$$

$$U = w \lg(p+1) \quad (22a)$$

$$\frac{U}{c} = \sqrt{\frac{2 \delta \alpha}{p}} \lg(p+1). \quad (22b)$$

Die Auftragung gibt fast völlige Übereinstimmung mit der Kurve Fig. 4 mit Ausnahme von  $p = 0$ , wo sich als Grenzwert von (22b) 0 ergibt.

Für grössere  $p$  kann ohne weiteres mit der klassischen Formel (22b) gerechnet werden.

Die Art des ausgestossenen Materials ist vorläufig noch ohne Bedeutung.

Mit einem  $\delta\alpha = 2^0/_{00}$  wären bei  $p = 4$  rund 5% der Lichtgeschwindigkeit erreichbar, eine Geschwindigkeit, die für alle denkbaren planetarischen Reisen durchaus ausreichen würde. Auch  $U/c = 2^0/_{00}$  bei reiner Photonenstrahlung ( $U = 600$  km/sec) wäre schon ausserordentlich, da die parabolische Geschwindigkeit in Sonnennähe 617 km/sec beträgt. Allein hier tritt nun die *eigentliche Schwierigkeit* erst zu Tage, insofern als es mit den heute zur Verfügung stehenden Materialien kaum möglich scheint, die Geschwindigkeit gemäss Gleichung (19) bzw. (21) bei kleinen  $p$  zu erzeugen.

Wir gehen der Reihe nach einige Möglichkeiten kurz durch:

a) *Photonen (Lichtdruck).*

Man darf nicht vergessen, dass der Lichtdruck erst bei Strahlungsintensitäten spürbare Beträge annimmt, die ausserordentlich viel höher sind als in allen Lampen, Scheinwerfern, Röntgenröhren usw. Rechnet man z. B. aus, wie viel Rückdruck durch ein Parabolspiegel erzeugt wird, in dessen Fokus eine schwarz strahlende Kugel von  $4000^0$  K und 10 cm Radius steht, so findet man völlig ungenügende Werte, d. h. man würde zwar schon allmählich die berechnete Endgeschwindigkeit erreichen, aber erst in sehr langer Zeit. Solange das Raumschiff noch im Erdfeld ist, müssen aber Kräfte entwickelt werden, die mindestens die Grössenordnung des Gewichtes haben. Lichtdruck scheidet also aus.

b) *Geladene Teilchen.*

Teilchen mit Ladung eines Vorzeichens, z. B. Elektronen, können wegen der rapiden Aufladung der Rakete nicht in Frage kommen. Schon die kleinsten Mengen führen in wenigen Augenblicken zum Stillstand der Emission.

c) *Im Mittel neutrale Teilchen.*

Neutrale Teile hoher Geschwindigkeit wird man kaum richten können, ohne dass das umgebende Material auf die *thermische Gleichgewichtstemperatur* kommt, weil man immer mit sehr hohen Intensitäten rechnen muss. Wir nehmen deshalb weiterhin an, dass nur auf dem Wege der Wärmeproduktion und Ausfluss der erwärmten passiven Ausströmmasse ein genügend intensiver, gerichteter Materiestrahl erzeugt werden kann. Dann aber gelten

die bekannten Gesetze für das Ausströmen von Gasen ins Vakuum. Für ein Gas mit der Temperatur  $T$  im Raketen,,ofen“, mit den (konstant angenommenen) spezifischen Wärmen  $c_p$  und  $c_v$  (je Gramm) und dem Molekulargewicht  $m$  ergibt sich

$$w = \sqrt{2 J c_p T} \quad (J = \text{Wärmeäquivalent}) \quad (23)$$

und da

$$c_p = \frac{\mathfrak{C}_p}{m}; \quad w = K \cdot \sqrt{\frac{T}{m}}$$

wobei  $K$  für Gase gleicher Atomzahl gleich ist.

$$\begin{aligned} \mathfrak{C}_p \text{ ist für einatomige Gase} &= \frac{5}{2} \mathfrak{R} \sim 5 \frac{\text{cal}}{\text{Mol Grad}} \\ \text{für zweiatomige Gase} &= \frac{7}{2} \mathfrak{R} \sim 7 \frac{\text{cal}}{\text{Mol Grad}}. \end{aligned}$$

Nimmt man für  $T$  den zweifellos schon hohen Wert  $4000^\circ \text{K}$ , so folgt für:

Wasserstoff	(einatomig)	$w = 12\,900 \text{ m/sec}$
„	(zweiatomig)	$w = 10\,800 \text{ „}$
Helium	(einatomig)	$w = 6\,450 \text{ „}$
Stickstoff	(zweiatomig)	$w = 2\,900 \text{ „}$

Damit ergibt sich auch  $p$ . Die Energie  $\delta \alpha M_e c^2$  dient zur Temperaturerhöhung von  $p M_e$  von (praktisch) Null auf  $T^\circ \text{K}$ .

$$p = \frac{\delta \alpha c^2}{J c_p T}, \quad (24)$$

daraus für zweiatomigen Wasserstoff z. B. bei  $\delta \alpha = 2^\circ/_{00}$

$$p = 3 \cdot 10^6$$

eine unausführbar grosse Zahl.

Man sieht sogleich, dass es gar nicht möglich ist, die zur Verfügung stehende Energie entsprechend  $\delta \alpha = 2^\circ/_{00}$  auszunützen. So sind also die grossen Geschwindigkeiten (15 000 km/sec) anscheinend unerreichbar, weil wir, mindestens beim Weg über die Wärmeproduktion, mit der grossen Energie praktisch nichts anfangen können.

Rechnen wir mit dem technisch vielleicht noch denkbaren äussersten Wert  $p = 100$ , so genügt ein  $\delta \alpha$  von nur  $\frac{6,5}{10^8}$ , d. h. bei einem  $\delta$  von  $0,7^\circ/_{00}$  ( $U^{235}$ ) ein  $\alpha$  von  $\sim 10^{-4}$ . Die Geschwindigkeit wird dann nach Formel (22a)

$$U = 10800 \lg 101 \cong 50\,000 \text{ m/sec.}$$



Dies würde ohne weiteres für eine Mondfahrt, ja sogar für eine Fahrt zur Venus oder zum Mars reichen.

Ein Massenverhältnis  $p = 10$  ergäbe

$$U = 10\,800 \cdot \lg 11 \cong 26\,000 \text{ m/sec}$$

und würde für eine Mondfahrt genügen.

Wir können das Ergebnis der Diskussion folgendermassen zusammenfassen:

1. Die Kernspaltungsenergie von  $U^{235}$  würde an sich für Raumfahrten im Planetenraum ausreichen.
2. Die Schwierigkeiten liegen:
  - a) in der Erzeugung der hohen Auspuffgeschwindigkeiten über den Weg des thermischen Gleichgewichtes;
  - b) in der technischen Realisierung eines genügend grossen Massenverhältnisses.

Vergleicht man mit den bisherigen Überlegungen zur Raumfahrt bei Anwendung von Brennstoffen, so liegt der prinzipiell mögliche Fortschritt im wesentlichen in der Erreichung 2—3mal höherer Auspuffgeschwindigkeiten durch Verwendung von Wasserstoff als passiver Treibsubstanz. Im übrigen liegen die technischen Probleme nicht wesentlich verschieden.

Institut für Aerodynamik der E.T.H. Zürich.

### Erratum.

Ergänzung zu der Arbeit von FR. LÜDI: „Zur Theorie des Magnetfeldgenerators für Mikrowellen“, H. P. A. vol. XIX, Fasc. 1. 1946, S. 3.

Ich werde von Herrn Professor GREINACHER, Physik. Inst. der Universität Bern, in dankenswerter Weise darauf aufmerksam gemacht, daß die in meiner Publikation unter (22) angegebene Gleichung (welche ich, entsprechend der in der Literatur üblichen Benennung, als Hullsche Gleichung bezeichnet habe) schon im Jahre 1912 von Herrn GREINACHER, Verhdl. der Deutsch. Phys. Ges. **14**, 858 (1912) sh. Gl. 4, angegeben wurde, was mir leider entgangen ist.

## Zur Ladungsabhängigkeit der Kernkräfte in der Vektormesonentheorie ohne neutrale Mesonen

von Res Jost.

(5. II. 1946.)

Die  ${}^1S$ -Potentiale eines Zwei-Nukleonen-Systems werden untersucht. Die Hamilton-Funktion ist der Vektor- (oder Pseudoskalar-) mesontheorie ohne neutrale Mesonen bei starker Kopplung entnommen. Die Ladungsabhängigkeit der Potentiale erweist sich als zu stark auch dann, wenn die Isobarananregungsenergie klein ist gegenüber der mittleren Wechselwirkungsenergie der Nukleonen.

### § 1. Einleitung.

Die experimentellen Untersuchungen über die Streuung von Neutronen und Protonen in Wasserstoff haben ergeben, dass die eigentlichen Kernkräfte zwischen zwei Nukleonen im massgebenden  ${}^1S$ -Zustand fast unabhängig sind vom Ladungszustand der beiden Kernteilchen<sup>1)</sup>. In der „charged theory“ (nur geladene Mesonen) wirken, unter der Annahme schwacher Kopplung, zwischen Teilchen gleicher Ladung (z. B. zwei Protonen) in erster Näherung keine Kräfte. Sie widerspricht also den Tatsachen. Um die Ladungsunabhängigkeit der Kernkräfte zu erreichen, ist man, immer unter der Annahme schwacher Kopplung, gezwungen, entweder neben den geladenen Mesonen auch neutrale Mesonen in symmetrischer Weise einzuführen (symmetrische Theorie) oder auf die geladenen Mesonen zur Erklärung der Kernkräfte überhaupt zu verzichten („neutral theory“). Die letzte Möglichkeit erscheint aus folgenden Gründen wenig befriedigend: zunächst muss man auf die Mesontheorie des  $\beta$ -Zerfalls und der magnetischen Momente des Neutrons und Protons verzichten, weiter hat man zwar geladene Mesonen in der Höhenstrahlung direkt beobachtet, die Existenz ungeladener Mesonen aber ist äusserst unsicher, und es ist schwer zu verstehen, wieso gerade die Teilchen, deren Existenz gesichert erscheint, aus der Theorie der Kernkräfte ausgeschlossen werden. Es wäre, von diesem Standpunkt aus beurteilt, im Gegenteil wünschbar, nur

---

<sup>1)</sup> TUVE, HEYDENBURG und HAFSTAD, Phys. Rev. **50**, 806 (1936); BREIT, CONDON und PRESENT, Phys. Rev. **50**, 825 (1936); BREIT und FEENBERG, Phys. Rev. **50**, 850 (1936).

unter Heranziehung geladener Mesonen allein, eine Theorie der Kernkräfte aufzubauen.

Eine solche Möglichkeit könnte sich in der charged theory mit starker Kopplung ergeben. Es ist ein wesentliches Ergebnis der Mesontheorien mit starker Kopplung, dass sie das Nukleon mit neuen inneren Freiheitsgraden versehen: insbesondere kann das Nukleon in jeder Theorie, die geladene Mesonen einführt, alle „ganzzahligen“ Ladungswerte annehmen. Dies hat zur Folge, dass auch Kernteilchen mit gleicher Ladung geladene Mesonen austauschen können: auch in der charged theory wirken demnach zwischen Teilchen gleicher Ladung weitgehend ähnliche Kräfte wie zwischen Teilchen verschiedener Ladung.

Es ist das Ziel dieser Arbeit, zu untersuchen, ob die Kernkräfte zwischen zwei Nukleonen im  $^1S$ -Zustand unter Annahme der charged theory wenigstens näherungsweise ladungsunabhängig sein können.

Das Nukleon-Modell entnehmen wir, ähnlich wie dies FIERZ, WENTZEL und BLEULER<sup>1)</sup> für die symmetrische Theorie getan haben, der Pseudoskalar- oder Vektormesontheorie<sup>2)</sup> (oder auch einer Mischungstheorie). Auch in methodischer Hinsicht werden wir ähnlich vorgehen wie diese Autoren.

Die Lage eines Nukleons ist (ähnlich wie die Lage eines starren Körpers) durch seinen Ortsvektor und eine Drehung, die etwa durch eine orthogonale Matrix  $\|x_{ik}\|$  dargestellt sei, gegeben. Bei festgehaltenem Ortsvektor kann sich das Nukleon demnach noch auf der dreidimensionalen Drehgruppe bewegen. Die kinetische Energie dieser Bewegung: die Isobarenenergie, lautet<sup>3)</sup>:

$$\frac{\epsilon}{2} [2\vec{d}^2 - h_3^2] + \text{const.}$$

und entspricht der kinetischen Energie eines symmetrischen Kreisel.

$\epsilon$  ist die Isobarenkonstante,

$\vec{d}$  der Spin (Drehimpuls im „raumfesten“ Koordinatensystem) des Nukleons mit den Eigenwerten:

$$\vec{d}^2 = j(j+1) \quad j = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \dots$$

<sup>1)</sup> FIERZ, H. P. A. **17**, 181 (1944) im folgenden als F. zitiert. FIERZ und WENTZEL, H. P. A. **17**, 215 (1944) im folgenden als I zitiert. WENTZEL, H. P. A. **17**, 252 (1944); BLEULER, H. P. A. **18**, 317 (1945).

<sup>2)</sup> Die Theorie wurde entwickelt von PAULI und DANCOFF in Phys. Rev. **62**, 85 (1942); PAULI und KUSAKA: Phys. Rev. **63**, 400 (1943).

<sup>3)</sup> PAULI und DANCOFF l. c. S. 104.

$h_3$  ist die 3-Komponente des isotopen Spins (Drehimpuls im „körperfesten“ Koordinatensystem) mit den Eigenwerten:

$$h_3 = n \quad n = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2} \dots, \quad |n| \leq j,$$

$n + \frac{1}{2}$  ist die Ladung des Nukleons<sup>1)</sup>.

Zwischen zwei Nukleonen im Abstand  $r$  wirken eine Zentralkraft und eine Tensorkraft. Die Tensorkraft wird hier ignoriert. Die Zentralkraft hat das Potential:  $V(r) \cdot \Omega$ , wo  $V(r)$  eine Funktion des Nukleonenabstandes ist, über deren genaueren Verlauf wir hier keine Voraussetzungen machen.

$\Omega$  ist eine Funktion der „Orientierung“, also der orthogonalen Matrizen  $\|x_{ik}\|$  und  $\|x'_{ik}\|$  der beiden Nukleonen. In der Bezeichnung von F., dem wir hier folgen, lautet sie<sup>2)</sup>:

$$\Omega = \sum_{i=1}^2 \sum_{k=1}^3 x_{ik} x'_{ik}.$$

Der Ansatz unterscheidet sich von demjenigen in der symmetrischen Theorie dadurch, dass der Index  $i$  (der sich auf den isotopen Spin bezieht) in der Summe nur über die Werte 1, 2 läuft, währenddem er in der symmetrischen Theorie über 1, 2, 3 läuft.

Eine angenäherte Ladungsunabhängigkeit der Kernkräfte im  $^1S$ -Zustand ist nur unter der Voraussetzung  $|\overline{V(r)}| \geq \varepsilon$ ,  $|\overline{V(t)}|$ : Mittelwert von  $|V(r)|$ , zu erwarten, da man für  $|\overline{V(r)}| \ll \varepsilon$  wieder im wesentlichen zur Theorie der schwachen Kopplung zurückkommt. Wir werden im folgenden sogar voraussetzen, dass  $|\overline{V(r)}| \gg \varepsilon$  sei.

Unter dieser Voraussetzung gibt es ein Intervall  $r < r_0$ , in welchem  $|V(r)| \gg \varepsilon$ .

Im Sinne der „Adiabatenmethode“ beziehen wir unsere Rechnungen auf dieses Intervall: wir halten also die Orte der beiden Nukleonen fest und bestimmen die Energieeigenwerte  $W(r)$  als Funktion des Abstandes.

Die entsprechende Hamiltonfunktion des Zweikörperproblems lautet:

$$H = T + V(r) \cdot \Omega$$

wo  $T$  die Isobarenenergie der beiden Nukleonen vorstellt. Bei unserer Voraussetzung sind die Eigenzustände von  $H$  kleine Schwingungen um die Minimallagen,  $V(r) \cdot \Omega = \text{Min.}$  Da die  $\|x_{ik}\|$ ,

<sup>1)</sup> Der Zusammenhang der  $\|x_{ik}\|$  mit der Transformation von „raumfesten“ auf das „körperfeste“ Koordinatensystem: F. S. 182.

<sup>2)</sup> PAULI und KUSAKA l. c. S. 405 (61) und (62).



$\|x'_{ik}\|$  orthogonale Matrizen (der Determinante  $-1$ ) sind, ist  $-2 \leq \Omega \leq +2$ . Die Extrema werden erreicht:

$$\left. \begin{aligned} \Omega = -2 \quad \text{für} \quad x_{ik} = -x'_{ik} \quad i=1,2 \\ x_{3k} = x'_{3k} \end{aligned} \right\} k=1,2,3.$$

$$\Omega = +2 \quad \text{für} \quad x_{ik} = x'_{ik} \quad i, k=1,2,3.$$

Ist  $V(r) > 0$ , so treten kleine Schwingungen um die erste Gleichgewichtslage auf. Die Nukleonen stossen sich also auf der Drehgruppe ab, was für die Stabilität der schweren Kerne notwendig ist<sup>1)</sup>. Ist  $V(r) < 0$ , so treten Schwingungen um die zweite Gleichgewichtslage auf. Die Nukleonen ziehen sich auf der Drehgruppe an; es tritt keine Absättigung der Kernkräfte ein, was bei schweren Kernen zum Zusammenbruch führt<sup>2)</sup>. Wir werden deshalb im folgenden  $V(r) > 0$  voraussetzen. Auf den Fall  $V(r) < 0$  werden wir in § 6 noch kurz eingehen.

## § 2. Transformation der Hamiltonmatrix.

Die Hamiltonfunktion lautet:

$$H = \frac{\varepsilon}{2} [2\tilde{d}_1^2 + 2\tilde{d}_2^2 - (h_{13}^2 + h_{23}^2)] + V(r) \cdot \Omega + \text{const.} \quad (1)$$

Dabei bedeuten  $\tilde{d}_1, \tilde{d}_2$  mit den Komponenten  $(d_{11}, d_{12}, d_{13}), (d_{21}, d_{22}, d_{23})$  die Spins,  $h_{13}, h_{23}$  die 3-Komponenten des isotopen Spins der beiden Nukleonen,

$$\Omega = \sum_{i=1}^2 \sum_{k=1}^3 x_{ik} x'_{ik}. \quad (2)$$

Die Operatoren

$$\tilde{D} = \tilde{d}_1 + \tilde{d}_2 \quad (3)$$

und

$$H_3 = h_{13} + h_{23} \quad (4)$$

kommutieren mit der Hamiltonfunktion. Es ist daher zweckmässig, diese in den folgenden Variablen darzustellen:

$j_1, j_2$  : Spinbeträge der Nukleonen:  $j_i = \frac{1}{2}, \frac{3}{2} \dots$

$J$  : Betrag des Gesamtspins  $\tilde{D}$ :  $J = 0, 1, 2 \dots$

$M$  : 3-Komponente des Gesamtspins:  $M = 0, \pm 1, \pm 2 \dots$

$n_1, n_2$  : 3-Komponenten des isotopen Spins der Nukleonen:

$$n_i = \pm \frac{1}{2}, \pm \frac{3}{2} \dots$$

<sup>1)</sup> COESTER, H. P. A. **17**, 35 (1944). Der Fall der charged theory ist dort nicht behandelt. Das Vorgehen bleibt sich aber gleich.

<sup>2)</sup> WENTZEL, H. P. A. **15**, 686 (1942) zeigt, dass auch die Berücksichtigung der kinetischen Energie den Zusammenbruch nicht zu verhindern vermag.

Vektor- und Pseudokalartheorie ergeben  $V > 0$ . Vermutlich ergäbe die Pseudovektorthorie  $V < 0$ . KEMMER, Proc. Roy. Soc. **166**, 127 (1938).

Die Variablen unterliegen den folgenden Beschränkungen:

$$\left. \begin{array}{l} |M| \leq J, \quad |j_1 - j_2| \leq J \leq j_1 + j_2 \\ |n_i| \leq j_i \quad i=1, 2 \end{array} \right\} \quad (5)$$

$J$  und  $M$  sind Integrationskonstanten, wir unterdrücken sie daher als Matrixindices.

Nach der Transformation wird  $H$  von der Form sein:

$$\begin{aligned} (j_1, j_2, n_1, n_2 | H | j_1', j_2', n_1', n_2') = \\ \frac{\varepsilon}{2} \left[ 2 \left( j_1 + \frac{1}{2} \right)^2 + 2 \left( j_2 + \frac{1}{2} \right)^2 - (n_1^2 + n_2^2) \right] \cdot 1 \\ + V(r) (j_1, j_2, n_1, n_2 | \Omega | j_1', j_2', n_1', n_2') + \text{const.} \end{aligned} \quad (6)$$

Die Hilfsmittel zur Berechnung der Matrix  $\Omega$  sind in F. enthalten.  $\Omega$  entsteht nämlich aus den Formeln (IV. 1) bis (IV. 5) (F.S. 192), indem man dort den Index  $i$  nur über die Werte 1 und 2 laufen lässt und ausserdem  $h_{1i}, h_{2i}; c_{1i}, c_{2i}; c_{1i}^*, c_{2i}^*$  (wir führen an Stelle des Akzentes ' zur Unterscheidung der Nukleonen einen ersten untern Index ein), gemäss (II. 3) und der Bemerkung auf S. 185 unten und S. 186 oben, in den Variablen  $j_i, n_i$  ausdrückt. Die Terme, die aus der Summation über  $k$  entstehen, sind identisch mit  $A_i(J, j_1, j_2)$  in (IV.).

$\Omega$  hat also die folgende Gestalt:

$$\begin{aligned} (j_1, j_2, n_1, n_2 | \Omega | j_1', j_2', n_1', n_2') = \\ \frac{1}{4} \alpha(j_1, j_1') \alpha(j_2, j_2') (j_1, j_2 | A | j_1', j_2') \cdot (j_1, j_2, n_1, n_2 | B | j_1', j_2', n_1', n_2') \end{aligned} \quad (7)$$

wo

$$\alpha(j, j) = \frac{1}{j(j+1)} \quad \alpha(j, j-1) = \alpha(j-1, j) = \frac{1}{j \sqrt{4j^2 - 1}} \quad (8)$$

und

$$\begin{aligned} (j_1, j_2 | A | j_1, j_2) &= A_1(J, j_1, j_2) \\ (j_1, j_2 | A | j_1-1, j_2) &= A_2(J, j_1, j_2) \\ (j_1, j_2 | A | j_1-1, j_2+1) &= A_3(J, j_1, j_2) \\ (j_1, j_2 | A | j_1-1, j_2-1) &= A_4(J, j_1, j_2). \end{aligned} \quad (9)$$

Die Matrix  $B$  entsteht aus den Termen mit dem Index  $i$  in (IV. 1) bis (IV. 5) und lässt sich durch elementare Rechnung gewinnen.

Zu ihrer Angabe führen wir für gewisse Indexkombinationen Nummern ein:

$$1- \sim (j_1, j_2, n_1, n_2 | \dots | j_1, j_2, n_1-1, n_2+1)$$

$$1+ \sim (j_1, j_2, n_1, n_2 | \dots | j_1, j_2, n_1+1, n_2-1)$$

analog

$$2 \mp \sim (j_1, j_2, \dots | \dots | j_1-1, j_2, \dots)$$

$$3 \mp \sim (j_1, j_2, \dots | \dots | j_1-1, j_2+1, \dots)$$

$$4 \mp \sim (j_1, j_2, \dots | \dots | j_1-1, j_2-1, \dots).$$

Für  $B'$  gilt dann folgende Tabelle

$$\begin{aligned} 1- & [(j_1+n_1)(j_1-n_1+1)(j_2+n_2+1)(j_2-n_2)]^{\frac{1}{2}} \\ 2- & -[(j_1+n_1)(j_1+n_1-1)(j_2+n_2+1)(j_2-n_2)]^{\frac{1}{2}} \\ 2+ & [(j_1-n_1)(j_1-n_1-1)(j_2+n_2)(j_2-n_2+1)]^{\frac{1}{2}} \\ 3- & [(j_1+n_1)(j_1+n_1-1)(j_2+n_2+2)(j_2+n_2+1)]^{\frac{1}{2}} \\ 3+ & [(j_1-n_1)(j_1-n_1-1)(j_2-n_2+2)(j_2-n_2+1)]^{\frac{1}{2}} \\ 4- & -[(j_1+n_1)(j_1+n_1-1)(j_2-n_2)(j_2-n_2-1)]^{\frac{1}{2}}. \end{aligned} \quad (10)$$

Alle übrigen von Null verschiedenen Matrixelemente ergeben sich aus der Hermitizität von  $\Omega$  und aus der Symmetrie in den beiden Nukleonen 1 und 2. Die Ladungserhaltung ist evident, da nur Matrixelemente von Null verschieden sind, für welche  $n_1+n_2=n_1'+n_2'$ .  $N=n_1+n_2$  ist daher eine Integrationskonstante,  $N+1$  die Ladung des Zwei-Nukleonen-Systems.

Spezialisieren wir auf  $J=0$ , mit welchem Fall wir uns im folgenden ausschliesslich befassen werden, so folgt aus (5)

$$j_1=j_2=j \quad (11)$$

und es treten nur die Indexkombinationen  $1 \mp$  und  $4 \pm$  neben den dazu konjugierten auf.

Aus (7), (8), (9), (10) ergibt sich

$$\begin{aligned} (j, n_1, n_2 | \Omega | j, n_1-1, n_2+1) &= -\frac{1}{2j(j+1)} \\ &\cdot [(j+n_1)(j-n_1+1)(j-n_2)(j+n_2+1)]^{\frac{1}{2}} \\ (j, n_1, n_2 | \Omega | j-1, n_1-1, n_2+1) &= -\frac{1}{2j\sqrt{4j^2-1}} \\ &\cdot [(j+n_1)(j+n_1-1)(j-n_2)(j-n_2-1)]^{\frac{1}{2}}, \end{aligned} \quad (12)$$

wobei die Matrixindices der Beschränkung

$$|n_i| \leq j, \quad n_i, j \text{ halbzahl} \quad (5')$$

unterworfen sind.

Hier ist es jetzt zweckmässig, die Ladung als neue Variable einzuführen, indem man setzt:

$$\mu = \frac{1}{2} (n_1 + n_2) \quad \nu = \frac{1}{2} (n_1 - n_2). \quad (13)$$

$\mu$  wird als Integrationskonstante in den Matrixindices wieder unterdrückt. Aus (5') ergibt sich bei vorgegebenem  $\mu$ :

$$j \geq |\mu| \quad \text{und} \quad -j + |\mu| \leq \nu \leq j - |\mu|. \quad (14)$$

Weiter muss  $\mu + \nu$  halbzahl sein.

Als Matrixelemente ergeben sich gemäss (12):

$$\begin{aligned} (j, \nu | \Omega | j, \nu \mp 1) \\ = -\frac{1}{2j(j+1)} [(j + \mu \pm \nu)(j - \mu \pm \nu)(j + \mu \mp \nu + 1)(j - \mu \mp \nu + 1)]^{\frac{1}{2}} \\ (j, \nu | \Omega | j-1, \nu \mp 1) \\ = -\frac{1}{2j\sqrt{4j^2-1}} [(j + \mu \pm \nu)(j - \mu \pm \nu)(j + \mu \pm \nu - 1)(j - \mu \pm \nu - 1)]^{\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (15)$$

Gemäss (13) kann  $\mu$  alle positiven und nicht positiven ganzen und halbganzen Zahlwerte annehmen.

$2\mu + 1$  ist die Ladung des Zustandes.

Wir schliessen diesen Paragraphen mit der Bemerkung, dass es zwar möglich aber gänzlich unzweckmässig ist, den Betrag des totalen isotopen Spins ( $K$  bei F.) als Matrixindex einzuführen. Dies war in der symmetrischen Theorie dem Problem angepasst, weil  $K$  in jener Theorie eine Integrationskonstante darstellt, was hier offenbar nicht der Fall ist.

### § 3. Das Näherungsverfahren zur Lösung des Eigenwertproblems.

Nach den Erfahrungen, die man mit der symmetrischen Theorie gemacht hat, erscheint der Versuch einer exakten Lösung des Eigenwertproblems für die Matrix  $H$  auch im einfachsten Fall  $J = M = \mu = 0$  aussichtslos. WENTZEL und FIERZ haben in I eine Näherungsmethode entwickelt, die sie mit der Bezeichnung „Oszil-



laternäherung“ belegen. Wendet man dieses Verfahren auf unser Problem an, so ergeben sich vollständig unübersichtliche Formeln. Wir sehen uns deshalb gezwungen, die mathematische Form der Oszillatornäherung passend abzuändern. Wie dies geschieht, werde an einem Beispiel erläutert.

Das Hauptachsenproblem sei durch folgende Matrix definiert (es handelt sich im wesentlichen um den Fall  $J = K = 0$  in I):

$$\begin{aligned} (x | H | x) &= x^2 \\ (x | H | x-1) &= (x-1 | H | x) = -\omega^2. \end{aligned} \quad (16)$$

Die Eigenwertgleichung lautet ( $W$  = Eigenwert):

$$(x^2 - W) u(x) - \omega^2 [u(x-1) + u(x+1)] = 0. \quad (17)$$

Sie ist äquivalent einer Mathieu'schen Differentialgleichung. Der Variabilitätsbereich von  $x$  sei zunächst das Gitter der ganzen Zahlen. Nun weiss man aber, dass jeder Lösungsvektor von (17) bei beliebigem  $W$  sich einbetten lässt in eine analytische (hier sogar ganze) Lösung von (17) mit beliebigem komplexen  $x^1$ . Es ist also sinnvoll  $u(x)$  zu differenzieren. WENTZEL und FIERZ machen den Ansatz:

$$u(x) = \int e^{ixz} w(z) dz, \quad (18)$$

wobei das Integral über einen passenden Weg der komplexen  $z$ -Ebene zu erstrecken ist.

Aus (18) folgt:

$$u(x \pm 1) = \int e^{ixz} e^{\pm iz} w(z) dz \quad (19)$$

$$x^2 \cdot u(x) = \int e^{ixz} [-w''(z)] dz, \quad (20)$$

wobei wir in (20) partiell integriert haben, unter der Voraussetzung, dass die integralfreien Summanden in den Integrationsgrenzen verschwinden. Schliesslich merken wir uns noch folgende Formeln für die Ableitungen von  $u(x)$  an:

$$u^{(v)}(x) = \int e^{ixz} (iz)^v w(z) dz. \quad (21)$$

<sup>1)</sup> N. E. NÖRLUND, Vorlesungen über Differenzenrechnung. Springer 1924 (im folgenden als: „NÖRLUND“ zitiert). 10. Kapitel, § 1.

Gemäss (19) und (20) ist (17) erfüllt, wenn  $w(z)$  folgender Differentialgleichung genügt:

$$w'' + [W + \omega^2 (e^{iz} + e^{-iz})] w = 0, \quad (22)$$

welches die schon erwähnte Mathieu-Gleichung darstellt. Oszillatornäherung bedeutet Entwickeln der Exponentialfunktionen in (22) und Abbrechen der Reihen nach den quadratischen Termen in  $z$ . Dies ist für  $\omega^2 \gg 1$  zulässig. Höhere Potenzen von  $z$  werden störungsmässig behandelt. Führen wir die Entwicklung der Exponentialfunktion schon in (19) durch, so erkennen wir mit (21), dass sie einer Taylorentwicklung von  $u(x \pm 1)$  um den Punkt  $x$  gleichkommt. Oszillatornäherung bedeutet Abbrechen der Taylorreihe nach der zweiten Ableitung.

So ergibt sich das im Folgenden dargestellte Näherungsverfahren.

#### A. Oszillatornäherung für „eindimensionale“ Probleme.

Es seien die Eigenwerte einer reellen Matrix  $(x|H|x')$  mit den folgenden nicht identisch verschwindenden Elementen zu bestimmen:

$$\begin{aligned} (x|H|x) &= f(x) \\ (x|H|x+1) &= -p_{+1}(x) \\ (x|H|x-1) &= -p_{-1}(x). \end{aligned} \quad (23)$$

$H$  braucht nicht unbedingt hermitisch zu sein.

Der Variabilitätsbereich von  $x$  sei zunächst ein Abschnitt aus dem ganzzahligen Gitter:

$$A \leq x \leq B \quad (23')$$

$f(x)$ ,  $p_{+1}(x)$  und  $p_{-1}(x)$  seien meromorphe Funktionen. Die Eigenwertgleichung lautet:

$$[f(x) - W] u(x) = \sum_{k=-1}^{+1} p_k(x) u(x+k). \quad (24)$$

Wir erweitern zunächst den Variabilitätsbereich von  $x$  auf das unbegrenzte ganzzahlige Gitter, indem wir an Stelle von (23') die folgende Forderung stellen:

$$\begin{aligned} p_{-1}(A) u(A-1) &= 0 \\ p_{+1}(B) u(B+1) &= 0. \end{aligned} \quad (25)^1$$

<sup>1)</sup> Durch (25) wird erreicht, dass die Funktionswerte für  $x > B$  und  $x < A$  mit den  $u(x)$  in  $A \leq x \leq B$  nicht gekoppelt sind. Natürlich betrachten wir nur solche Lösungen  $u(x)$ , die in  $A \leq x \leq B$  nicht identisch verschwinden und dort normierbar sind.

Dadurch werden wir auf eine Randwertaufgabe für Differenzengleichungen geführt.

Jede Lösung von (24) lässt sich wieder einbetten in eine meromorphe Lösung von (24), wobei  $x$  jetzt eine komplexe Variable bedeutet. (Damit erhält (25) erst den vollen Sinn.) Unter gewissen einschränkenden Voraussetzungen über die Lage der Singularitäten, auf deren Angabe wir aber verzichten, kann man dann (24) in eine Differentialgleichung unendlich hoher Ordnung verwandeln, indem man  $u(x+k)$  nach  $k$  entwickelt.

Die Differentialgleichung lautet:

$$[f(x) - W] u(x) = \sum_{v=0}^{\infty} \frac{1}{v!} \sum_k p_k(x) \left(k \frac{d}{dx}\right)^v u(x). \quad (24')$$

In der Oszillatornäherung bricht man in (24') die Reihe über  $v$  nach der zweiten Ableitung ab und erhält so (unter Umständen) eine brauchbare Näherungslösung für  $u(x)$ , die wir mit  $\psi(x)$  bezeichnen. Es gilt:

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \sum_k k^2 p_k(x) \cdot \psi'' + \sum_k k p_k(x) \cdot \psi' + \\ + \left( \sum_k p_k(x) - f(x) + W \right) \psi = 0. \end{aligned} \quad (26)$$

Es liegt nicht in unserer Absicht, allgemeine Kriterien für die Anwendbarkeit der eben skizzierten Methode anzugeben. Wir begnügen uns damit, aus zwei Beispielen einige Schlüsse zu ziehen. Dabei wird es sich hauptsächlich darum handeln, was an Stelle von (25) für die Funktion  $\psi(x)$  zu fordern ist.

1. *Beispiel* (vgl. (16)).

$$\begin{aligned} f(x) &= x^2 \\ p_{+1}(x) &= p_{-1}(x) = 1. \end{aligned} \quad (27)$$

Aus (26) folgt:

$$\psi'' - (\beta^2 x^2 - \alpha) \psi = 0 \quad \beta^2 = V^{-1}, \quad \alpha = \frac{W + 2V}{V}. \quad (28)$$

Für  $V > 0$  also  $\beta^2 > 0$  ist dies die Oszillatorgleichung mit den Eigenwerten

$$\begin{aligned} \alpha_n &= \beta(2n+1) \\ \beta > 0, n &= 0, 1, 2, \dots \end{aligned} \quad \text{oder} \quad \begin{aligned} W_n &\cong -2V + (2n+1) \sqrt{V} \\ n &= 0, 1, 2, \dots \end{aligned} \quad (29)$$

Die Näherung hat nur dann einen Sinn, wenn die Eigenfunktionen zu (28):  $\psi_n(x)$  über dem Gitter der ganzen Zahlen langsam ver-

änderlich sind. Dies ist der Fall, wenn  $\beta^{1/2} \ll 1$  ist. Die Darstellung von  $\alpha_n$  in (29) ist als Beginn einer Entwicklung nach  $\beta$  aufzufassen: man kann nämlich die dritte und vierte Ableitung (vgl. (24')) noch störungsmässig berücksichtigen, was in (29) für  $\alpha_n$  einen Zusatz  $\sim \beta^2$  ergibt<sup>1)</sup>.

Es werde nun in (27) der Variabilitätsbereich von  $x$  wie folgt abgeändert:<sup>2)</sup>

$$x = 1, 2, 3 \dots \quad (27')$$

Im Sinn von (25) können wir (27') ersetzen durch die Forderung

$$u(0) = 0, \quad (30)$$

wobei wir als Eigenlösungen natürlich nur solche zulassen, die auf dem positiven ganzzahligen Gitter nicht identisch verschwinden und dort normierbar sind. Offenbar haben wir (30) auch für  $\psi(x)$  zu verlangen, wodurch in (29) die Werte von  $n$  auf die ungeraden natürlichen Zahlen beschränkt werden.

Ist  $V < 0^1$ , so hat (28) keine in einem unendlichen Intervall normierbare Lösung. In diesem Fall alternieren die Eigenfunktionen von (27). Setzt man an Stelle von  $u(x) = (-1)^x v(x)$ , so gelten für  $v(x)$  alle Gleichungen mit  $V > 0$ .

Über alternierende Vorzeichen ist so zu verfügen, dass (26) im betrachteten Intervall eine normierbare Lösung besitzt.

Das Beispiel (27) ist dadurch ausgezeichnet, dass weder die der Matrix (27) entsprechende Differenzengleichung, noch die Näherungsgleichung (28) im Endlichen eine Singularität besitzen. Darin liegt der Grund, weshalb wir (25) unmittelbar übertragen konnten.

## 2. Beispiel.

$$\left. \begin{aligned} f(x) &= \beta x & \beta > 2 \\ p_{-1}(x) &= p_{+1}(x-1) = \sqrt{(x+K)(x-K)} \end{aligned} \right\} \begin{aligned} &K = 0, 1, 2, \dots \\ &x = K, K+1, \dots \end{aligned} \quad (31)$$

In dieser Gestalt passt das Beispiel noch nicht in unsere Methode:  $p_i(x)$  sind irrational. Der irrationale Bestandteil der Eigenlösungen  $u(x)$  lässt sich aber leicht separieren:

$$\begin{aligned} u(x) &= \gamma(x) v(x) \\ \gamma^2(x) &= (x-K+1)(x-K+2) \dots (x+K). \end{aligned} \quad (32)$$

<sup>1)</sup> Das Resultat stimmt mut. mut. überein mit der Störung die WENTZEL und FIERZ in I berechnen.

<sup>2)</sup> Vgl. I.



Für  $v(x)$  ergibt sich eine Differenzengleichung, die durch folgende Matrix bestimmt ist:

$$\begin{aligned} f(x) &= \beta x \\ \bar{p}_{+1}(x) &= x + K + 1 \\ \bar{p}_{-1}(x) &= x - K. \end{aligned} \quad (33)$$

Sie lautet:

$$(x + K + 1) v(x + 1) + (x - K) v(x - 1) + (W - \beta x) v(x) = 0. \quad (33')$$

Lassen wir  $x$  jetzt beliebig variieren, so haben wir an Stelle von (25) zu setzen:

$$[(x - K) v(x - 1)]_{x \rightarrow K} = 0, \quad (34)$$

weiter müssen wir die Normierungsbedingung

$$0 < \sum_K \gamma^2(x) |v(x)|^2 < \infty \quad (35)$$

hinzufügen.

Im Anhang werden wir auf Grund von (34) und (35) die Differenzengleichung (33') und damit das Eigenwertproblem (31) exakt lösen. Es wird sich ergeben, dass die Eigenlösungen:  $v_n(x)$  ganze Funktionen von  $x$  sind. Die Oszillatornäherung liefert die Differentialgleichung:

$$(x + \tfrac{1}{2}) \psi'' + (2K + 1) \psi' + (2x + 1 - \beta x + W) \psi = 0 \quad (36)$$

oder, wenn man den Nullpunkt der  $x$ -Achse um  $\frac{1}{2}$  nach links verschiebt:

$$x \psi'' + (2K + 1) \psi' + (\alpha - \delta^2 x) \psi = 0$$

mit

$$\begin{aligned} \alpha &= W + \tfrac{1}{2} \beta \\ \delta^2 &= \beta - 2. \end{aligned} \quad (36')$$

Wendet man auf (36') die elementaren Methoden der Wellenmechanik an: Polynommethode  $\psi(x) = e^{-\delta x} \mathfrak{P}_n(x)$ ,  $\delta > 0$ , so ergeben sich für  $\alpha$  die Eigenwerte:

$$\alpha_n = (2n + 2K + 1) \delta, \quad n = 0, 1, 2, \dots,$$

also

$$W_n \cong -\frac{1}{2} \beta + (2n + 2K + 1) \delta, \quad n = 0, 1, 2, \dots \quad (37)$$

Damit unsere Näherung sinnvoll ist, muss  $\delta \ll 1$  sein. Man überzeugt sich übrigens leicht, dass die Eigenfunktionen  $\psi_n(x)$  von (36') die Differenzengleichung (33') bis auf Terme  $\sim \delta^2$ , diese

eingeschlossen, erfüllen<sup>1)</sup>. Dadurch ist gezeigt, dass (37) als eine Entwicklung der Eigenwerte  $W_n$  nach Potenzen von  $\delta$  zu betrachten ist.

Die Differenzengleichung (33') hat in  $x=K-1$  eine Singularität<sup>2)</sup>. (34) bedeutet, dass wir nur Lösungen zulassen, die sich in diesem Punkt regulär verhalten. Die Übertragung auf die Differentialgleichung (36') lautet offenbar: es sind nur solche Lösungen zuzulassen, die sich in der Singularität  $x=0$  der *Differentialgleichung* regulär verhalten. Die Singularität der Differentialgleichung fällt aber immer ausserhalb des Normierungsintervalles  $K + \frac{1}{2} \leq x < \infty$ . Dass trotzdem die Lösungen von (36'), die in  $x=0$  singular sind, auch dann, wenn sie in  $K + \frac{1}{2} \leq x < \infty$  normierbar sind, ausgeschlossen werden müssen, sei am Beispiel:

$$\psi(x) = x^{-2K} e^{-\delta x} \quad \text{zu} \quad \alpha = -(2K-1)\delta$$

illustriert. Nach (33') sollte, wenigstens näherungsweise, gelten:

$$\left(x + K + \frac{1}{2}\right) \left(\frac{x}{x+1}\right)^{2K} e^{-\delta} + \left(x - K - \frac{1}{2}\right) \left(\frac{x}{x-1}\right)^{2K} e^{+\delta} \cong 2x + (2K-1)\delta + x\delta^2$$

was offensichtlich nicht erfüllt ist.

### B. Oszillatornäherung für „zweidimensionale“ Probleme.

Die sinngemässe Übertragung unseres Näherungsverfahrens auf Matrizen mit mehreren Matrixindices (mehrdimensionale Matrizen) ist trivial.

Es sei  $(y, x | H | y', x')$  eine (nicht notwendig hermitesche) reelle Matrix mit folgenden nicht verschwindenden Elementen:

$$\begin{aligned} \langle y, x | H | y, x \rangle &= f(xy) \\ \langle y, x | H | y+i, x+k \rangle &= -p_{ik}(xy) \quad i, k=0, \pm 1; \quad i^2+k^2 > 0. \end{aligned} \quad (38)$$

Die Schrödingergleichung lautet:

$$\sum_{ik} p_{ik}(xy) u(x+k, y+i) = [f(xy) - W] u(xy). \quad (39)$$

Entwickeln wir hierin  $u(x+k, y+i)$  nach  $k$  und  $i$  und brechen nach den zweiten Ableitungen ab, so erhalten wir eine Differential-

<sup>1)</sup> Die Verifikation kann, ähnlich wie wir dies in § 5 in extenso durchführen werden, an Hand der erzeugenden Funktion

$$\sum_0^\infty \psi_n^{(K)}(x) t^n = e^{-\frac{1+t}{1-t} \delta x} (1-t)^{-2K-1}$$

erfolgen.

<sup>2)</sup> NÖRLUND S. 273.

gleichung für eine (unter Umständen brauchbare) Näherungsfunktion  $\psi(xy)$ :

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \sum_{i,k} k^2 p_{ik} \cdot \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \sum_{i,k} i k p_{ik} \cdot \frac{\partial^2 \psi}{\partial x \partial y} + \frac{1}{2} \sum_{i,k} i^2 p_{ik} \cdot \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} + \\ & + \sum_{i,k} k p_{ik} \cdot \frac{\partial \psi}{\partial x} + \sum_{i,k} i p_{ik} \cdot \frac{\partial \psi}{\partial y} + \left( \sum_{i,k} p_{ik} - f + W \right) \psi = 0. \end{aligned} \quad (40)$$

#### § 4. Anwendung der Oszillatornäherung.

Es handelt sich jetzt um die Lösung des Hauptachsenproblems, welches durch (6) und (15) dargestellt ist. (Fall  $J=0$ ). Vorerst erkennt man, dass die Fälle  $\mu=\alpha$  und  $\mu=-\alpha$  dieselben Eigenwerte liefern. Wir können uns also auf

$$\mu \geq 0 \quad (41)$$

beschränken. Wie in der Einleitung § 1 erwähnt wurde, schränken wir unsere Diskussion auf einen Bereich ein, wo

$$V(r) \gg \varepsilon, \quad \text{also} \quad \beta = \sqrt{\frac{\varepsilon}{V}} \ll 1. \quad (42)$$

Im Bereich  $V(r) \ll \varepsilon$  kommt man mit gewöhnlichen Störungsverfahren zum Ziel. Die Zuordnung der Eigenwerte in den beiden  $r$ -Bereichen geschieht nach bekannten Prinzipien (Verbot des Überschneidens adiabatischer Potentialkurven). Durch die Separation

$$u(j, v) = \gamma(j, v) \cdot v(j, v),$$

mit

$$\gamma^2(j, v) = \left( j + \frac{1}{2} \right) \prod_{\sigma=1}^{2\mu} (j - \mu + v + \sigma) (j - \mu - v + \sigma) \quad (43)$$

schaffen wir in  $\Omega$  die Wurzeln weg und erhalten eine Matrix  $\Omega$  mit den folgenden Elementen (wir setzen  $y = j + \frac{1}{2}$ ,  $x = v$ ):

$$(y, x | \overline{\Omega} | y, x \pm 1) = -\frac{1}{2} + \frac{(\mu \pm x)(\mu \pm x + 1)}{2 \left( y^2 - \frac{1}{4} \right)} \quad (44)$$

$$(y, x | \overline{\Omega} | y + 1, x \pm 1) = -\frac{1}{4} - \frac{(\mu \pm x + \frac{1}{2})(\mu \pm x + \frac{3}{2})}{2y} + \frac{(\mu \pm x)(\mu \pm x + 1)}{2 \left( y + \frac{1}{2} \right)}$$

$$(y, x | \overline{\Omega} | y - 1, x \pm 1) = -\frac{1}{4} + \frac{(\mu \pm x + \frac{1}{2})(\mu \pm x + \frac{3}{2})}{2y} - \frac{(\mu \pm x)(\mu \pm x + 1)}{2 \left( y - \frac{1}{2} \right)}.$$

Gemäss (38) führen wir die Bezeichnungen ein:

$$\begin{aligned} p_{ik}(xy) &= -(y, x | \overline{Q} | y+i, x+k) \\ f(xy) &= \beta^2 (2y^2 - x^2 - \mu^2). \end{aligned} \quad (45)$$

Nach (14) ist der Variabilitätsbereich von  $(xy)$  wie folgt eingeschränkt:

$$\begin{aligned} y &\text{ ganz, } y > \mu, \\ \mu + x &\text{ halbganz, } -y + \mu + \frac{1}{2} \leq x \leq y - \mu - \frac{1}{2}. \end{aligned} \quad (46)$$

An die Stelle von (46) setzen wir wieder eine Randbedingung für die Differenzengleichung:

$$\begin{aligned} \left. \begin{aligned} p_{0,1} \cdot v &= 0 \\ p_{-1,1} \cdot v &= 0 \end{aligned} \right\} &\text{ längs } y - x - \mu - \frac{1}{2} = 0 \\ \left. \begin{aligned} p_{-1,1} \cdot v &= 0 \\ p_{0,-1} \cdot v &= 0 \end{aligned} \right\} &\text{ längs } y - x - \mu - \frac{3}{2} = 0 \\ \left. \begin{aligned} p_{0,-1} \cdot v &= 0 \\ p_{-1,-1} \cdot v &= 0 \end{aligned} \right\} &\text{ längs } y + x - \mu - \frac{1}{2} = 0 \\ p_{-1,-1} \cdot v &= 0 \quad \text{längs } y + x - \mu - \frac{3}{2} = 0. \end{aligned} \quad (47)$$

Da, wie man aus (44) erkennt, alle  $p_{ik}$ , die in (47) auftreten, verschwinden, verlangt (47) die Endlichkeit von  $v(x+k, y+i)$  längs den angegebenen Geraden.

Natürlich sind nur solche Lösungen  $v(xy)$  brauchbar, die im Bereich (46) nicht identisch verschwinden und dort mit dem Gewicht  $\gamma^2(xy)$  aus (43) normierbar sind. Um zur Oszillatornäherung überzugehen, müssen wir die Differentialgleichung (40) aufstellen. Aus (44) folgt:

$$\begin{aligned} \sum k^2 p_{ik} &= 2, \quad \sum ik p_{ik} = \frac{4(\mu+1)x}{y} - 2y \frac{(2\mu+1)x}{y^2 - 1/4} \\ \sum i^2 p_{ik} &= 1 + \frac{x^2 + \mu(\mu+1)}{y^2 - 1/4} \\ \sum k p_{ik} &= 0, \quad \sum ip_{ik} = \frac{2}{y} \left[ \left( \mu + \frac{1}{2} \right) \left( \mu + \frac{3}{2} \right) + x^2 \right] - 2y \frac{x^2 + \mu(\mu+1)}{y^2 - 1/4} \\ \sum p_{ik} &= 2. \end{aligned} \quad (48)$$

Um zu einer annehmbaren Differentialgleichung zu gelangen, entwickeln wir die Ausdrücke nach  $y^{-1}$  und vernachlässigen in den Koeffizienten der zweiten Ableitungen in (40) Terme mit  $y^{-2} \dots$  in den Koeffizienten der ersten Ableitungen Terme mit  $y^{-3} \dots$ , wobei  $|x| \sim y$  betrachtet wird. Wir werden später zeigen, dass die Vernachlässigungen, die wir dadurch begehen, unsere Näherung,



deren Ziel es ist, die Eigenwerte  $W$  bis auf Terme in  $\sqrt{\varepsilon V}$  genau zu bestimmen, nicht stören. Es ergibt sich dann:

$$\begin{aligned} \sum k^2 p_{ik} &= 2, & \sum ik p_{ik} &= \frac{2x}{y}, & \sum i^2 p_{ik} &= 1 + \frac{x^2}{y^2} \\ \sum k p_{ik} &= 0 & \sum i p_{ik} &= \frac{4\mu+3}{2y} - \frac{x^2}{2y^3} & \sum p_{ik} &= 2. \end{aligned} \quad (49)$$

Damit lautet schliesslich (40):

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \psi}{\partial x^2} + \frac{2x}{y} \frac{\partial^2 \psi}{\partial x \partial y} + \left( \frac{1}{2} + \frac{x^2}{2y^2} \right) \frac{\partial^2 \psi}{\partial y^2} + \\ + \left( \frac{4\mu+3}{2y} - \frac{x^2}{2y^3} \right) \cdot \frac{\partial \psi}{\partial y} + [\alpha - \beta^2 (2y^2 - x^2)] \psi = 0, \end{aligned} \quad (50)$$

wo

$$\alpha = \frac{W + 2V + \varepsilon \mu^2}{V}. \quad (51)$$

Die Substitution:

$$\begin{aligned} x &= \xi \\ y &= \sqrt{\xi^2 + \frac{1}{2}\eta^2} \end{aligned} \quad \text{mit der Umkehrung} \quad \begin{aligned} \xi &= x \\ \eta &= \sqrt{2(y^2 - x^2)} \end{aligned} \quad (52)$$

führt zur Normalform:

$$\Delta \psi + \frac{4\mu+1}{\eta} \frac{\partial \psi}{\partial \eta} + [\alpha - \beta^2 (\xi^2 + \eta^2)] \psi = 0. \quad (53)$$

Separation:

$$\psi = u(\xi) \cdot v(\eta) \quad (54)$$

liefert:

$$v'' + \frac{4\mu+1}{\eta} v' + (\lambda - \beta^2 \eta^2) v = 0 \quad (55)$$

$$u'' + [(\alpha - \lambda) - \beta^2 \xi^2] u = 0. \quad (56)$$

(55) stellt die Radialgleichung des  $4\mu+2$ -dimensionalen isotropen Oszillators dar und hat die Eigenwerte:

$$\lambda_l = 2[2l + 2\mu + 1]\beta, \quad l = 0, 1, 2, \dots \quad (57)$$

(56) ist die gewöhnliche Oszillatorgleichung mit den Eigenwerten:

$$\alpha_n = \lambda + (2n + 1)\beta,$$

also

$$\alpha_{l,n}^{(\mu)} = (2n + 4l + 4\mu + 3)\beta. \quad (58)$$

Nach (51) also

$$W_{l,n}^{(\mu)} = -2V + (2n + 4l + 4|\mu| + 3)\beta + \dots$$

$$n = 0, 1, 2, \dots, \quad l = 0, 1, 2, \dots \quad (59)$$

$$W_m^{(\mu)} = -2V + (2m + 4|\mu| + 3)\beta + \dots$$

$$m = 0, 1, 2, \dots \quad (60)$$

Die bestehende Entartung würde durch eine Störungsrechnung weitgehend aufgehoben.

### § 5. Die Eigenfunktionen, Rechtfertigung der Entwicklung (49).

Setzt man in (55)

$$\beta \eta^2 = z \quad \text{und} \quad v(z) = e^{-\frac{z}{2}} w, \quad (61)$$

so ergibt sich für  $w$  die Differentialgleichung der Laguerreschen Polynome:

$$zw'' + (m - z)w' + lw = 0 \quad (62)$$

mit

$$m = 2\mu + 1 \quad (63)$$

und

$$\lambda = 4\mu + 2 + 4l. \quad (64)$$

Die Lösungen seien mit  $w_l^{(m)}(z)$  bezeichnet. Dann hat man die folgende erzeugende Funktion:

$$\sum_{l=0}^{\infty} w_l^{(m)}(z) \cdot x^l = (1 - x)^{-m} e^{-\frac{zx}{1-x}}. \quad (65)$$

Durch Ableiten nach  $x$  folgt die Rekursion:

$$m w_{l-1}^{(m+1)} = l w_l^{(m)} + z w_{l-1}^{(m+2)}, \quad (66)$$

wobei wir  $w_l^{(m)} \equiv 0$  setzen für  $l < 0$ .

Für die Eigenfunktionen von (55) zum Ladungsparameter  $\mu$  und zum Eigenwertparameter  $l$  ergibt sich als Funktion von  $x$  und  $y$  aus (61), (63), (64); (52):

$$v_l^{(\mu)}(xy) = e^{-\beta(y^2 - x^2)} w_l^{(2\mu+1)}[2\beta(y^2 - x^2)], \quad (67)$$

nach (65) und (66):

$$\sum_{l=0}^{\infty} v_l^{(\mu)} \cdot x^l = (1 - x)^{-2\mu-1} e^{-\frac{1+x}{1-x}\beta(y^2 - x^2)} \quad (68)$$

und

$$(2\mu + 1) v_{l-1}^{(\mu+\frac{1}{2})} = l v_l^{(\mu)} + 2\beta(y^2 - x^2) \cdot v_{l-1}^{(\mu+1)}. \quad (69)$$

Die Eigenfunktionen von (53) lauten:

$$\psi_{l,n}^{(\mu)} = u_n(x) v_l^{(\mu)}(xy) \quad (70)$$

wo  $u_n(x)$  die bekannten Oszillatoreigenfunktionen sind.

Nach (67) sind sie gerade oder ungerade in  $x$ , je nachdem  $n$  gerade oder ungerade ist.

Damit unsere Rechnung sinnvoll ist, müssen die Funktionen  $\psi(x, y)$  über dem Gitter der ganzen Zahlen langsam variieren. Nach (67) und (56) bedeutet dies, dass

$$\beta^{1/2} \ll 1. \quad (71)$$

(58) ist aufzufassen als Beginn einer Entwicklung von  $\alpha_{l,n}^{(\mu)}$  nach Potenzen von  $\beta$ . Dies ist natürlich nur dann widerspruchsfrei möglich, wenn  $\psi_{l,n}^{(\mu)}(xy)$  die Differenzengleichung

$$\sum p_{ik}(xy) \psi(x+k, y+i) = [f(xy) - V^{-1}W] \psi(xy) \quad (72)$$

genügend genau erfüllt. Falls dies nachgeprüft ist, ist die Entwicklung (49) gerechtfertigt.

Zur Verifikation beschränken wir uns zunächst auf „kleine“  $(xy)$ -Werte, d. h. auf solche, für welche

$$\beta^2 x^2, \beta^2 y^2 \ll 1. \quad (73)$$

In  $[f(xy) - V^{-1}W] = [\beta^2(2y^2 - x^2) + 2 - \alpha]$  können wir, da  $\alpha \sim \beta$  ist, den Term  $\beta^2(2y^2 - x^2)$  als klein gegen  $\alpha$  weglassen, desgleichen andere Terme von gleicher oder kleinerer Grössenordnung. Wir bezeichnen

$$\sum p_{ik}(xy) \cdot \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y+i) \equiv R_{l,n}^{(\mu)}. \quad (74)$$

Aus (68) folgt:

$$\sum_{l=0}^{\infty} v_l^{(\mu)}(x, y+i) x^l = (1-x)^{-2\mu-1} e^{-\frac{1+x}{1-x} \beta^2(y^2-x^2)} e^{-\frac{1-x}{1+x} \beta(2iy+i^2)}.$$

Hierin entwickeln wir die zweite Exponentenfunktion und vernachlässigen Terme  $\sim \beta^2$  und höhere; nach (68) folgt dann leicht:

$$v_l^{(\mu)}(x, y+i) \cong \left[1 - 2\beta i \left(y + \frac{i}{2}\right)\right] v_l^{(\mu)} - 4\beta i \left(y + \frac{i}{2}\right) v_{l-1}^{(\mu+\frac{1}{2})} \quad (75)$$

oder nach (70)

$$\psi_{l,n}^{(\mu)}(x, y+i) \cong \left[1 - 2\beta i \left(y + \frac{i}{2}\right)\right] \psi_{l,n}^{(\mu)} - 4\beta i \left(y + \frac{i}{2}\right) \psi_{l-1,n}^{(\mu+\frac{1}{2})}; \quad (76)$$

damit wird aus (74)

$$\begin{aligned} R_{l,n}^{(\mu)} &\cong \sum_k \left( \sum_i p_{ik} \right) \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y) - \\ &- 2\beta \sum_k \left( \sum_i i \left( y + \frac{i}{2} \right) p_{ik} \right) \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y) - \\ &- 4\beta \sum_k \left( \sum_i i \left( y + \frac{i}{2} \right) p_{ik} \right) \psi_{l-1,n}^{(\mu+\frac{1}{2})}(x+k, y). \end{aligned} \quad (77)$$

Aus (44) und (45):

$$\left. \begin{aligned} \sum_i p_{ik} &= 1 \\ \sum_i i \left( y + \frac{i}{2} \right) p_{ik} &= kx + \mu + 1 \end{aligned} \right\} \quad (78)$$

so dass aus (77) wird:

$$\begin{aligned} R_{l,n}^{(\mu)} &\cong [1 - 2\beta(\mu + 1)] \sum_k \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y) - 2\beta x \sum_k k \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y) - \\ &- 4\beta(\mu + 1) \sum_k \psi_{l-1,n}^{(\mu+\frac{1}{2})}(x+k, y) - 4\beta x \sum_k \psi_{l-1,n}^{(\mu+\frac{1}{2})}(x+k, y). \end{aligned} \quad (79)$$

Es sind also nur noch die Grössen

$$\sum_{k=-1,+1} \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y) \quad \text{und} \quad \beta x \sum_{k=-1,+1} k \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y)$$

zu bestimmen.

Zunächst folgt, immer auf dieselbe Weise, aus (68):

$$\begin{aligned} \sum_k \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y) &\cong v_l^{(\mu)} \sum_k u_n(x+k) + \beta [v_l^{(\mu)} + 2v_{l-1}^{(\mu+\frac{1}{2})}] \sum_k u_n(x+k) + \\ &+ 2[v_l^{(\mu)} + 2v_{l-1}^{(\mu+\frac{1}{2})}] \beta x \sum_k k u_n(x+k) \end{aligned} \quad (80)$$

und

$$\beta x \sum_k k \psi_{l,n}^{(\mu)}(x+k, y) \cong v_l^{(\mu)} \beta x \sum_k k u_n(x+k); \quad (81)$$

überall wo keine Variablen geschrieben sind, ist  $xy$  zu setzen.

Aus den bekannten Formeln für die Oszillatoreigenfunktionen leitet man (in unserer Näherung)<sup>1)</sup> leicht ab:

$$\sum_k u_n(x+k) \cong [2 - (2n+1)\beta] u_n \quad (82)$$

$$\beta x \sum_k k u_n(x+k) \cong 2n\beta u_n + \beta u_{n-2}.^1) \quad (83)$$

<sup>1)</sup> Die Hermiteschen Polynome in  $u_n(x)$  sind wie üblich normiert.



Setzt man (82) und (83) in (80) und (81) ein und verwendet die Resultate in (79), so folgt für

$$R_{l,n}^{(\mu)} \cong [2 - (2n + 4\mu + 3)\beta] \psi_{l,n}^{(\mu)} - 4\beta(2\mu + 1) \psi_{l-1,n}^{(\mu+\frac{1}{2})}. \quad (84)$$

Zur Umformung des letzten Summanden benützt man (69), worin rechts der zweite Term zu vernachlässigen ist:

$$R_{l,n}^{(\mu)} \cong [2 - (2n + 4l + 4\mu + 3)\beta] \psi_{l,n}^{(\mu)} = [2 - \alpha_{l,n}^{(\mu)}] \psi_{l,n}^{(\mu)} \quad (85)$$

womit die Verifikation für „kleine“  $(xy)$  durchgeführt ist<sup>1)</sup>.

Für alle „nicht kleinen“  $(xy)$ -Werte können wir die Entwicklung (49) durchführen. Will man auch hier (wenigstens solange  $\beta y \ll 1$  ist) explizit die Konsistenz der Lösung nachweisen, so hat man nur zu zeigen, dass dann gilt:

$$\psi(x+k, y+i) \cong \left\{ 1 + i \frac{\partial}{\partial y} + k \frac{\partial}{\partial x} + \frac{1}{2} \left( i \frac{\partial}{\partial y} + k \frac{\partial}{\partial x} \right)^2 \right\} \psi(xy);$$

denn damit geht die Differenzengleichung (72) in die Differentialgleichung (50) über. Wir verzichten auf die ausführliche Durchrechnung.

Natürlich kann man die Approximation der Eigenwerte durch eine Störungsrechnung verbessern. Will man nur die Grössenordnung der Störung bestimmen, so bietet sich folgende Möglichkeit: man bestimmt einerseits die Störterme aus der Entwicklung (49) dadurch, dass man diese Entwicklung um 2 Potenzen in  $y^{-1}$  weitertreibt, ferner die Störterme aus der Vernachlässigung der Ableitungen höherer Ordnung in der Oszillatornäherung dadurch, dass man als Störungen auch die dritten und vierten Ableitungen von  $\psi$  nach  $x$  und  $y$  berücksichtigt, wobei man aber an der Entwicklung (49) festhält.

So findet man für die Störung der tiefsten Eigenwerte  $W_{0,0}^{(\mu)}$  leicht, dass sie  $\sim \varepsilon$  ist (grössere Terme, wie  $\varepsilon^{3/4} V^{1/4}$ , heben sich weg), dass also gilt:

$$W_{0,0}^{(\mu)} = -2V + (4|\mu| + 3)\sqrt{\varepsilon V} + O(\varepsilon). \quad (86)$$

<sup>1)</sup> Die durchgeführte Verifikation kann auch unter der schwächeren Voraussetzung:  $\beta(y^2 - x^2) \ll 1$  und  $\beta y \ll 1$  erfolgen.

## § 6. Diskussion der Resultate.

Die  $^1S$ -Zustände sind durch folgende Quantenzahlen ausgezeichnet:  $J=0$ .

Bahndrehimpuls  $L=0$ .

Den verschiedenen Ladungszuständen  $\mu$  entsprechen:

$\mu=0$  Deuteron

$\mu=\frac{1}{2}$  Proton-Proton  $\mu=-\frac{1}{2}$  Neutron-Neutron

Die den empirischen  $^1S$ -Zuständen zuzuordnenden Potentiale  $W_{l,n}^{(\mu)}$  sind die tiefsten, die mit dem Pauliprinzip verträglich sind.

$^1S$ -Zustände sind in den räumlichen Koordinaten symmetrisch, in den Spinkoordinaten<sup>1)</sup> antisymmetrisch, also nach dem Pauliprinzip in  $n_1, n_2$  symmetrisch, d.h. in  $x=\nu=\frac{1}{2}(n_1-n_2)$  (13) gerade. Nach (43) und § 5 gehören dazu  $W_{l,n}^{(\mu)}$  mit geradem  $n$ .

Demnach lauten die Potentiale der tiefsten  $^1S$ -Zustände:

$$W_{0,0}^{(\mu)}(r) = -2V(r) + (4|\mu| + 3)\sqrt{\varepsilon V(r)} + 0(\varepsilon)$$

im Bereich, wo  $V(r) \gg \varepsilon$ .

Die Abhängigkeit von  $\mu$ :  $W_{0,0}^{(1/2)} - W_{0,0}^{(0)} \cong 2\sqrt{\varepsilon V}$  ist viel zu stark, um mit der Erfahrung vereinbar zu sein.

Die „charged-theory“ ist also auch unter der Annahme starker Kopplung zur Darstellung der Kernkräfte ungeeignet.

Eigentümlicherweise tritt im Fall  $V < 0$ , den wir in § 1 ausgeschlossen haben, in unserer Näherung Ladungsunabhängigkeit ein.  $u(j, \nu)$  sei eine Eigenlösung zu  $V > 0$ . Wir gelangen zu einer Eigenlösung zu  $V' = -V$  und zum selben Eigenwert, indem wir setzen  $u'(j, \nu) = (-1)^\nu u(j, \nu)$ .

Die Eigenwerte zu  $V' = -V < 0$  stimmen also überein mit den Eigenwerten zu  $V$  und lauten allgemein für  $V \leq 0$ ,  $|V| \gg \varepsilon$ :

$$W_{l,n}^{(\mu)}(r) = -2|V(r)| + (2n + 4l + 4|\mu| + 3)\sqrt{\varepsilon|V(r)|} + \dots \quad (87)$$

Es sei nun  $V(r) < 0$ . Da der Faktor  $(-1)^\nu$  die Parität der Eigenfunktionen bei halbganzen  $\nu$  oder ganzem  $\mu$  (vgl. (14)) umkehrt, für ganzes  $\nu$  oder halbganzes  $\mu$  aber nicht verändert, sind den empirischen  $^1S$ -Zuständen die folgenden Potentiale zuzuordnen:

$$\left. \begin{array}{l} \text{Proton-Proton} \\ \text{Neutron-Neutron} \end{array} \right\} W_{0,0}^{(1/2)} = -2|V(r)| + 5\sqrt{\varepsilon|V(r)|} + \dots$$

$$\text{Deuteron} \quad W_{0,1}^{(0)} = -2|V(r)| + 5\sqrt{\varepsilon|V(r)|} + \dots$$

<sup>1)</sup>  $m_1, m_2$  bei F.

In unserer Näherung besteht also Ladungsunabhängigkeit der Kernkräfte. Natürlich ändert dies nichts an der in § 1 besprochenen Sachlage bei den schweren Kernen, die zum Ausschluss des Falles  $V(r) < 0$  zwingt.

#### ANHANG.

##### *Exakte Lösung des Eigenwertproblems (33')<sup>1)</sup>.*

Die Lösung  $v(x)$  von (33') gestattet die folgende Integraldarstellung:

$$v(x) = \frac{1}{2\pi i} \int z^{x-K} (\lambda_1 - z)^A (\lambda_2 - z)^B dz. \quad (88)$$

Der Integrationsweg in der komplexen  $z$ -Ebene bleibt noch frei. Es bedeuten:  $\lambda_1, \lambda_2$  die Wurzeln der Gleichung  $\lambda^2 - \lambda\beta + 1 = 0$  also

$$\lambda_{1,2} = \frac{\beta}{2} \pm \sqrt{\frac{\beta^2}{4} - 1}, \quad \lambda_1 > 1 > \lambda_2,$$

weiter

$$A = K + \frac{W + \lambda_2}{\lambda_1 - \lambda_2}, \quad B = K - \frac{W + \lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2}$$

und es ist

$$A + B = 2K - 1 \quad \text{eine ganze Zahl.} \quad (89)$$

Die Singularitäten des Integranden liegen in  $z=0$ ,  $z=\lambda$ , und  $z=\lambda_2$ . Sie sind im allgemeinen Verzweigungspunkte.

Zunächst seien  $A$  und  $B$  beide nicht 0, 1, 2 ... Wir erhalten ein Fundamentalsystem der Differenzengleichung, wenn wir als Integrationswege die Wege  $l_1$  und  $l_2$  wählen (vergl. die Figur):

$$v_1(x) = \frac{1}{2\pi i} \int_{l_1} \dots \quad v_2(x) = \frac{1}{2\pi i} \int_{l_2} \dots \quad (90)$$

Die Integrale konvergieren in  $R[x] > K-1$ . Die durch sie definierten analytischen Funktionen sind in  $x=K-1$  singular und haben dort Pole. Als asymptotisches Verhalten findet man leicht:  $v_1(x)$  nimmt für  $x \gg 1$  exponentiell zu,  $v_2(x)$  exponentiell ab.

Die allgemeine Lösung von (33') lautet:

$$v(x) = \pi_1(x) v_1(x) + \pi_2(x) v_2(x) \quad (91)$$

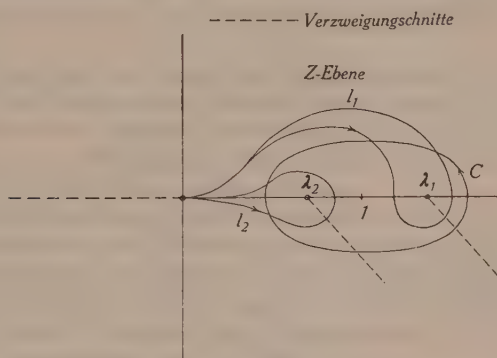
wo  $\pi_1(x)$  und  $\pi_2(x)$  beliebige (nicht notwendig analytische) periodische Funktionen der Periode 1 sind. Da für uns nur die Funk-

<sup>1)</sup> NÖRLUND, 11. Kap., § 6.

tionswerte in den Punkten  $K, K+1, \dots$  von Bedeutung sind, können wir  $\pi_1$  und  $\pi_2$  als Konstante annehmen, ohne dass wir dadurch Lösungen des Eigenwertproblems verlieren. Nun verlangt (34) die Regularität der Eigenlösungen im Punkte  $x=K-1$ .  $\pi_1$  und  $\pi_2$  in (91) sind demnach so zu bestimmen, dass  $v(x)$  im Normierungsintervall nicht identisch verschwindet und in  $x=K-1$  regulär ist. Dies ist im wesentlichen genau dann der Fall, wenn wir setzen:

$$v(x) = v_1(x) + v_2(x) = \frac{1}{2\pi i} \int_C \dots \dots \quad (92)$$

Wegen des angegebenen asymptotischen Verhaltens von  $v_1(x)$  ist  $v(x)$  nicht normierbar.



Es muss also mindestens eine der Zahlen  $A$  oder  $B$  eine natürliche Zahl sein, dann sind sie aber nach (89) beide ganz. Es sei jetzt  $B=-1, -2, \dots$ . Dann verschwindet  $v_1$  identisch, da  $A \geq 0$  wird. (92) stellt eine Eigenfunktion dar. Die zugehörigen Eigenwerte lauten:

$$W_n = -\frac{\beta}{2} + (2n+2K+1) \sqrt{\frac{\beta^2}{4} - 1}, \quad n=0, 1, 2, \dots \quad (93)$$

und stimmen mit (37) in der dort angegebenen Näherung überein.

Sind sowohl  $A$  als auch  $B$  natürliche Zahlen:  $A=\mu, B=\nu$ , so verschwinden  $v_1(x)$  und  $v_2(x)$  identisch. Als Ersatz findet man das folgende Fundamentalsystem:

$$v_1(x) = \int_0^{\lambda_2} z^{x-K} (\lambda_1 - z)^\mu (\lambda_2 - z)^\nu dz$$

$$v_2(x) = \int_{\lambda_2}^{\lambda_1} z^{x-K} (\lambda_1 - z)^\mu (\lambda_2 - z)^\nu dz$$



$v_1(x)$  ist in  $x=K-1$  singulär,  $v_2(x)$  ist für  $x \gg 1$  exponentiell zunehmend. Demnach gibt es in diesem Fall keine Eigenlösungen. Ganz entsprechend schliesst man den noch verbleibenden Fall:  $A=-1, -2 \dots$  aus. (93) stellt daher alle Eigenwerte dar. Nach (92) sind die Eigenfunktionen ganze Funktionen (im Sinn der Analysis).

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. GREGOR WENTZEL bin ich zu grossem Dank verpflichtet. Er hat diese Arbeit angeregt. Ihm verdanke ich es, dass ich sie zu Ende führen konnte.

Zürich, Physikalisches Institut der Universität.

# Über die Isotope $S^{37}$ und $P^{34}$ , die bei Bestrahlung von Chlor mit schnellen Neutronen entstehen

von E. Bleuler und W. Zündi.

(26. II. 1946.)

*Zusammenfassung:* Im ersten Teil werden Angaben gemacht über die Hochspannungsanlage, die Ionenquelle, das Beschleunigungsrohr, die Vakuumpumpen und die Bestrahlungskammer, sowie über die im vorläufigen Ausbau erreichten Betriebswerte.

Die Fehlerquellen der Messmethoden und Apparate werden im zweiten Teil diskutiert. Die Konstanten der FEATHER'schen Relation zwischen Reichweite und Maximalenergie der  $\beta$ -Spektren werden nachgeprüft. Durch eine Modifikation der Auswertung von Absorptionsmessungen können insbesondere bei komplexen Spektren genauere Aufschlüsse erhalten werden.

Im dritten Teil wird ein neues Schwefelisotop  $S^{37}$  mit 5 min Halbwertszeit beschrieben, dessen komplexes  $\beta$ -Spektrum zwei Gruppen von 4,3 und 1,6 MeV Maximalenergie aufweist. Eine schon bekannte Aktivität von 12,4 sec Halbwertszeit konnte dem Phosphorisotop  $P^{34}$  zugeordnet werden. Mit Hilfe einer Durchflussapparatur gelang die Messung der  $\beta$ -Maximalenergie von 5,1 MeV und der Nachweis eines Teilspektrums von 3,2 MeV.

Die genaue Kenntnis der Kernmassen ist von grosser Bedeutung für die Theorie des Kernbaues und der Kernkräfte. Besonders wichtig ist die Vermehrung der experimentellen Daten bei den leichten Kernen, bis zum Atomgewicht von etwa  $A = 40$ , da hier die schärfsten theoretischen Voraussagen gemacht werden können.

Das Gerüst für die Berechnung von Kernmassen wird durch die massenspektrographische Bestimmung stabiler Kerne gewonnen. Die instabilen Kerne können nun auf zwei Arten angeschlossen werden: 1. durch Messung der Energietönung von Kernprozessen, 2. durch Bestimmung der Zerfallsenergie der radioaktiven Prozesse. Die erste Methode hat den Vorteil, dass sie häufig nicht nur die Masse des Grundzustandes, sondern auch die Energie gewisser angeregter Niveaus berechnen lässt, wenn nämlich verschiedene Energiegruppen der Umwandlungsprodukte auftreten. Dabei kann es allerdings vorkommen, dass die zum Grundzustand führende Gruppe übersehen wird. Auch die Zuordnung

der einzelnen Umwandlungsprodukte zu den verschiedenen möglichen Kernreaktionen bereitet oft Schwierigkeiten. Dagegen lässt sich bei der zweiten Methode der aktive Körper entweder chemisch oder zeitlich infolge verschiedener Halbwertszeiten von den störenden Begleitern trennen. Die Aufgabe besteht hier darin, das radioaktive Zerfallsschema in Erfahrung zu bringen, die Energie der emittierten  $\gamma$ -Quanten und die Maximalenergie der auftretenden Elektronen oder Positronen zu bestimmen.

Wir haben nach der zweiten Methode eine Reihe von kurzlebigen Isotopen der leichten Elemente untersucht, welche durch Neutronenbestrahlung hergestellt werden können. Diese erste Mitteilung enthält Angaben über die verwendeten Apparaturen und Messmethoden, insbesondere über die Bestimmung der Maximalenergie von  $\beta$ -Spektren durch Absorptionsmessungen. Dann werden zwei bisher kaum oder gar nicht bekannte Isotope beschrieben, die bei Bestrahlung von Chlor mit schnellen Neutronen auftreten.

### I. Die Hochspannungsanlage.

Unter dem Namen „Tensator“ ist der grundsätzliche Aufbau der Anlage bereits beschrieben worden<sup>1)2)</sup>. Im Hinblick auf gewisse Abänderungen, die sich als notwendig erwiesen haben, muss aber nochmals kurz darauf eingegangen werden. Fig. 1 zeigt das generelle Schaltschema. Es werden zehn voneinander unabhängige Aggregate zur Erzeugung hoher Gleichspannungen in Serie geschaltet. Jedes dieser Aggregate besteht aus einem Einphasen-Wechselstrom-Synchrongenerator von 900 VA Scheinleistung, fremderregt durch einen kleinen Gleichstrom-Nebenschlussgenerator. Die Wechselspannung wird über einen praktisch stufenlos regulierbaren Autotransformator (Variac) auf die Primärwicklung des Hochspannungstransformators übertragen. Mechanische Gleichrichter besorgen die Aufladung zweier Kondensatoren in der bekannten GREINACHER-Verdopplungsschaltung.

Ursprünglich wurde die Höhe der Gleichspannung durch Veränderung der Generatorerregung eingestellt. Bei schwacher Erregung sind die Generatoren aber so „weich“, dass einerseits die Strom-Spannungscharakteristik sehr ungünstig verläuft, während andererseits die überwiegend kapazitive Belastung im Leerlauf zu unangenehmen Selbsterregungserscheinungen führt. Beide Schwierigkeiten konnten durch den Einbau der Reguliertransformatoren behoben werden. Die Spannung der neun untern Gruppen wird gemeinsam geändert durch mechanische Kupplung der Regulier-

transformatoren, während die zehnte Gruppe zur Fokussierung der Ionen gesondert bedient wird. Zwischen Generatoren und Transformatoren sind Umpoler angebracht, so dass beide Polaritäten zur Verfügung stehen.

Bei Verwendung von Resocel, Öl und Druckluft als Isoliermaterialien schien es auf Grund von Vorversuchen möglich, bei

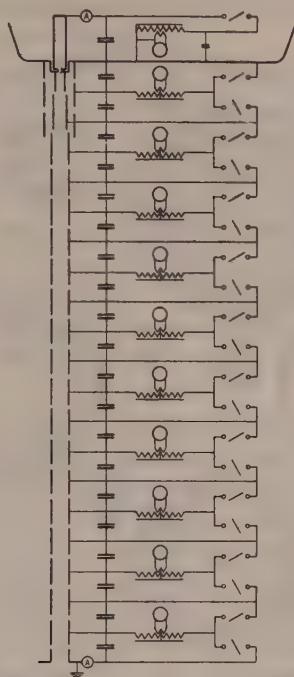


Fig. 1.

Generelles Schaltschema.

60 cm Höhe einer Stufe etwa 300 kV zu erreichen, so dass bestenfalls mit einer Totalspannung von 3 Millionen Volt gerechnet wurde. Die Aufstellung in freier Luft hätte einen sehr grossen Raum erfordert, weshalb auch für die äussere Isolation Öl vorgesehen war, wenn auch über dessen Verhalten bei so hohen Gleichspannungen wenig bekannt ist.

### Technische Gestaltung.

Die Generatoren von axial möglichst gedrungener Bauweise sind in einem Resocelrohr eingebaut und werden durch isolierende Kuppelwellen vom unten befindlichen 12-kW-Kurzschlussläufer-



motor angetrieben. Für die Erreger ist ein 1,5-kW-Motor vorgesehen. Eine schlanke, sechsfach gelagerte Isolierwelle, welche die zwanzig Nadeln der mechanischen Gleichrichter trägt, rotiert durch Vermittlung eines Zahnradgetriebes synchron mit den Generatoren.

Die drei Resocelhülsen, welche die Generatoren, Erreger und Gleichrichter enthalten, sind durch Rohrkrümmer zu einem druckfesten Kreislaufsystem vereinigt, in welchem der Druck zur Er-

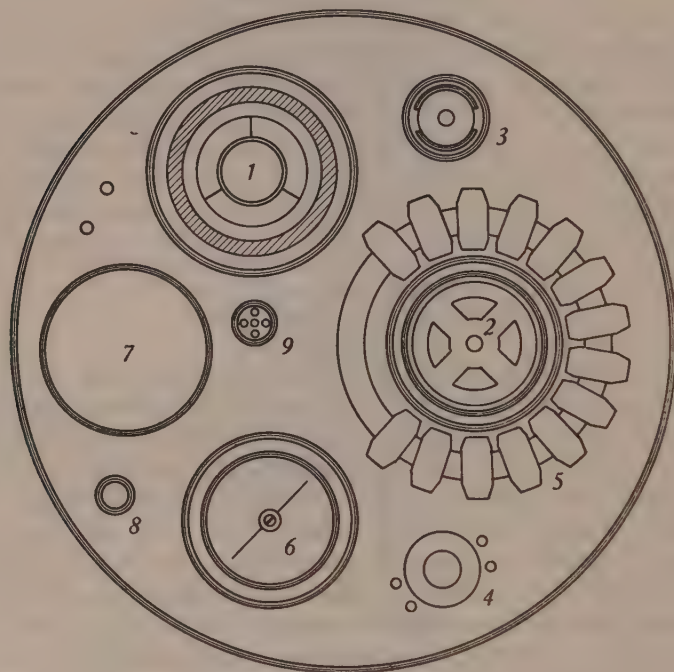


Fig. 2.

Querschnitt des Tensators.

- Legende: 1 Beschleunigungsrohr 2 Wechselstromgenerator 3 Erreger  
4 Reguliertransformator 5 Hochspannungstransformator 6 Nadelgleichrichter  
7 Kondensatoren 8 Hochohmwiderstand 9 Gas- und Kühlleitungen.

höhung der Überschlagnspannung auf mehrere Atmosphären gesteigert werden kann. Die Füllung erfolgt mit reinem Stickstoff, um die Bildung nitroser Gase zu vermeiden. Die Antriebsmotoren befinden sich im Druckraum, so dass keine rotierenden Durchführungen notwendig sind. Durch einen Ventilator wird der Stickstoff im Kreislauf umgewälzt, wobei er die Verlustwärme der elektrischen Maschinen in einem Rückkühler an das Kühlwasser abgibt.

Wie ein Querschnitt durch den Tensator (Fig. 2) weiter zeigt, birgt eine Resocelhülse von 40 cm Durchmesser das Ionenbeschleunigungsrohr, während in zwei kleinern Rohren die Hochohmwiderstände für die Spannungsmessung, sowie Bedienungs- wellen, Gaszuführungs- und Kühlleitungen untergebracht sind. Alle diese Einzelteile sind in sechs Säulen so zusammengebaut, dass sie zu Kontrollzwecken mit Hilfe eines Kranes in die Montagegrube abgesenkt werden können.

Eine grosse dreiteilige Resocelhülse von 130 cm Durchmesser und mehr als 600 cm Höhe umschliesst das Ganze und bildet eine äussere Gefässwand für die Ölfüllung, in welcher sich die Kondensatoren, Hochspannungs- und Reguliertransformatoren befinden. Die Hochspannungstransformatoren sind ringförmig ausgebildet und umschliessen den zugehörigen Wechselstromgenerator.

Die Hochspannungselektrode hat die Form einer Aluminiumkugel von 150 cm Durchmesser. Sie enthält auf engstem Raum zusammengedrängt die Ionenquelle und das zugehörige Gleichspannungsaggregat.

Bei kernphysikalischen Anlagen ist es unerlässlich, die Beschleunigungsspannung möglichst genau zu kennen. Beim Tensator ist hierfür ein Hochohmwiderstand eingebaut, der aus zwanzig Einheiten von je 1500 Megohm und 27 cm Länge besteht (Fabrikat IRC Typ MVO). Sie sind in einem Resocelrohr aufgereiht und ganz von Öl umgeben. Nach einer Spannungsprüfung unter Öl wurde der Widerstand jeder Einheit bei 60 und 30 kV, teilweise auch bei 300 Volt Belastung in einer Brückenschaltung gemessen. Sowohl Spannungs- wie Temperaturabhängigkeit der Widerstände sind vernachlässigbar klein. Der durch den Hochohmwiderstand fliessende Strom wird mit einem Lichtzeiger-Galvanometer gemessen, dessen 60 cm lange Skala auch aus grösserer Entfernung ablesbar bleibt.

Für den richtigen Betrieb der Anlage ist es wichtig, den gesamten fliessenden Gleichstrom zu kennen. Hierzu ist zwischen die Klemme des untersten Kondensators und die Erde ein Milliampèremeter geschaltet (Fig. 1). Dieses misst zwar nicht den effektiv von den einzelnen Stufen gelieferten Strom, sondern die Summe der zur Erde fliessenden Ladungsträger (Korona-, Isolations- und Ionenströme). Das Instrument muss gegen die bei Überschlügen auftretenden grossen Stoßströme geschützt werden durch eine Kombination von eng gestellter Funkenstrecke, Glüh- röhre, Drossel und Kondensator.

Alle Messinstrumente und Schalter sind auf einer Schalttafel vereinigt, in deren Nähe sich alle wichtigen Bedienungselemente befinden. Wenn immer möglich, wurden die Schalter so gekuppelt, dass bei Fehlbedienung keine Schäden entstehen können.

### Ionenquelle und Ionenoptik.

Wegen der schlechten Zugänglichkeit ist das OLIPHANT-RUTHERFORD'sche Kanalstrahlrohr<sup>3)</sup> die gegebene Ionenquelle, weil sie bei richtiger Konstruktion unverwundlich und weit zuverlässiger ist als alle andern bekannten Anordnungen. Fig. 3 zeigt einen etwas vereinfachten Schnitt der Ionenquelle und des obersten Teils des Beschleunigungsrohres. Die konstruktive Durchbildung ist von der bewährten Van de Graaf-Anlage des Institutes übernommen worden<sup>4)</sup>. Tombakfederrohre gestatten die Zentrierung des Innenteils und der ganzen Ionenquelle gegenüber dem Beschleunigungsrohr. Alle Elektroden bestehen aus hochglanzpoliertem Stahl. Kathode wie Anode werden mit Petroleum gekühlt, welches mit Hilfe einer Zahnradschleuse durch dünne Resocelrohre und Bunaschläuche gefördert und auf Erdoberpotential rückgekühlt wird. Wegen der erheblichen vertikalen Ausdehnung von ca. 7 m könnte im auslaufenden Teil der Kühlleitung durch Heberwirkung ein elektrisch ungünstiger Unterdruck entstehen. Dieser Gefahr begegnet ein gewichtsbelastetes Auslaufventil.

Bei dieser Ionenquelle spielen Kanalform und Anodenblende<sup>5)</sup> eine grosse Rolle für die Ionenausbeute. Im Rahmen einer Diplomarbeit von Herrn GRÜTTER wurde die wechselseitige Abhängigkeit eingehend untersucht, wobei der Ionenstrahl magnetisch analysiert wurde. Es waren die Bedingungen festzulegen, wie bei gegebener Gleichstromleistung ein optimales Verhältnis von Atomionen zu Gasnachströmung erzielt wird. Im Gegensatz zu den Resultaten von SCHÜTZE<sup>6)</sup> wurde ein Atomionenanteil von 80 bis 85% gefunden. Die Länge des Kanals darf seinen Durchmesser dreimal übertreffen, ohne Schaden für den Ionenstrom im kleinen ausnutzbaren Raumwinkel. Wichtig ist, dass die gegen den Entladungsraum gerichtete Kante nicht gerundet wird.

Eine ganz geringe Beimengung von Kohlenwasserstoffen zum reinen Wasserstoff (z. B. Butan in Bruchteilen eines Prozent) verringert den für die Entladung notwendigen Gasdruck um mehr als die Hälfte. Leider sinkt die Atomionenausbeute entsprechend, so dass kein Gewinn resultiert.

Gegenwärtig werden in der Anlage Deuteronen beschleunigt. Wir entwickeln den schweren Wasserstoff fortlaufend durch

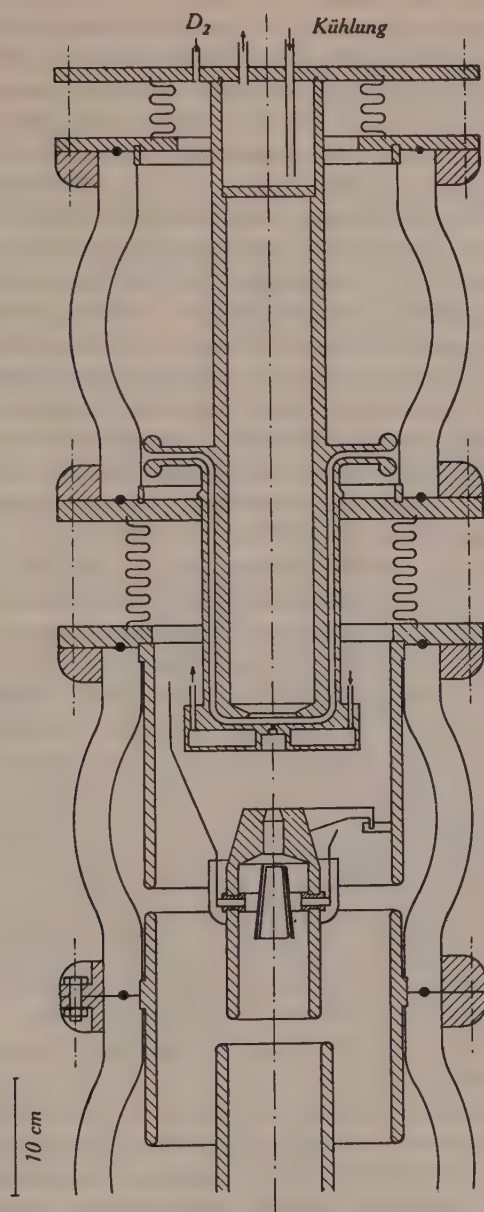


Fig. 3.

Ionenquelle und oberste Partie des Beschleunigungsrohres.



Elektrolyse von schwerem Wasser in einem U-Rohr. Die Wasserstoffseite steht durch eine 9 m lange Pyrex-Kapillarleitung von 1 mm Lumen in Verbindung mit dem doppelten FOWLER-Ventil, das auf der Ionenquelle aufgebaut ist. Die Gasnachströmung kann sehr fein und reproduzierbar eingestellt werden dank kinematisch einwandfreier Führung der gequetschten Neusilberröhrchen. Für den vollkommenen Abschluss dient ein Ventil kleinen Volumens. Beide Organe werden durch Isolierwellen betätigt.

Die Sauerstoffseite der Elektrolyseapparatur ist von der Aussenluft durch ein feinporiges Glasfilter abgetrennt, das mit einigen mm Quecksilber überschichtet ist. Der entwickelte Sauerstoff kann also unter geringem Überdruck entweichen. Normalerweise wird der Elektrolysestrom etwas höher eingestellt, als dem Wasserstoffverbrauch entspricht. Als Folge davon wird die Wassersäule verschoben bis zum Austausch der Kathode, wodurch die Gaserzeugung für eine kleine Zeitspanne aufhört. Bei geeigneter Formgebung der Platinelektrode kann man eine ganz kontinuierliche Selbstregulierung des Stromes erreichen.

Nach Öffnung eines Verbindungshahnes darf die Elektrolyseapparatur samt Glaskapillare evakuiert werden. Das Volumen der Sauerstoffseite ist so abgestimmt, dass die Wiederauffüllung auf den Arbeitsdruck ohne irgendwelche Manipulationen vor sich geht. Eine akustische Warnvorrichtung sichert gegen das Absaugen des schweren Wassers bei zu geringem oder aussetzendem Strom.

Zum Betrieb der Gasentladung ist eine Gleichspannung von 50 bis 60 kV bei einigen mA Strom erforderlich. Sie wird geliefert von einem Aggregat, das aus den gleichen Einzelteilen aufgebaut ist wie die Beschleunigungsstufen. Die Einweggleichrichtung lässt nur eine schlechte Ausnutzung des Generators zu. Durch Anordnung eines kleinen Kondensators parallel zur Sekundärwicklung des Hochspannungstransformators<sup>7)</sup> verdoppelte sich die Gleichstromleistung. Der grosse kapazitive Blindstrom wird primärseitig durch eine entsprechend bemessene Drossel kompensiert, so dass im Reguliertransformator und im Generator nur der Wirkstrom fliesst.

Die Anode der Gasentladung ist über einen ölgefüllten Silcobandwiderstand von  $2 \cdot 10^5$  Ohm mit dem Glättungskondensator verbunden. Die während der erstmaligen Formierung öfters vorkommenden Überschläge können dann an den polierten Flächen keinen Schaden anrichten.

Die Strom-Spannungs-Charakteristik einer solchen Gasentladung verlangt gebieterisch eine Kontrolle des Stromes.

Die normale Lösung, das Messinstrument durch eine Öffnung in der Hochspannungselektrode mittels Fernrohr abzulesen, war aus baulichen Gründen nicht gangbar. Versuche mit einem Kontaktinstrument, dessen von unten verstellbarer Kontakt ein akustisches Signal auslöste, befriedigten auf die Dauer nicht. Viel zuverlässiger erwies sich ein Glimmlampenrelais, das anspricht, wenn der Spannungsabfall an einem vom Gasentladungsstrom durchflossenen Widerstand die Zündspannung überschreitet. Die Grösse dieses Widerstandes kann mittels Isolierwelle in zwanzig Stufen verändert werden. Eine leichte Drehung im Gegenuhrzeigersinn bringt das Relais jeweils in die Anfangsstellung zurück.

Fertige Formeln für die ionenoptische Berechnung vielstufiger Beschleunigungssysteme gibt es nicht, doch sind die Grundlagen vorhanden<sup>8) 9)</sup>. Sehr vereinfacht wird die Berechnung durch die Tatsache, dass nur die erste Stufe eine wesentliche Rolle spielt, während die folgenden summarisch behandelt werden können. Es sind widerstrebende Forderungen zu erfüllen: Die geometrische Ionenoptik verlangt eine grosse Brennweite der ersten Stufe, besonders im Hinblick auf die „Spektralfehler“, welche durch die inhomogene Geschwindigkeit der Kanalstrahlen entstehen. Will man aber die unvermeidliche Streuung des Ionenstrahles durch die Gasmoleküle gering halten, so müssen die Ionen auf kürzestem Weg beschleunigt werden, was auf kleine Brennweite führt. Für unsere Verhältnisse schien die zweite Forderung die wichtigere zu sein, doch gingen wir nur so weit, dass noch Raum blieb für den Einbau zweier Plattenpaare für die elektrostatische Ablenkung des Ionenstrahls, ähnlich wie beim M.I.T.-Generator<sup>10)</sup>. Die Spannungen hierfür werden an zwei Potentiometern abgegriffen, welche von einem kleinen 2 kV-Glühkathodengleichrichter gespeist werden. Vollen Nutzen ziehen kann man aus dieser Einrichtung nur, wenn Ionen homogener Geschwindigkeit zur Verfügung stehen.

### Das Beschleunigungsrohr<sup>11)</sup>.

Es besteht, dem elektrischen Teil entsprechend, aus zwanzig Porzellankörpern von 30 cm Höhe und 22 cm kleinstem Innendurchmesser. Die Stirnflächen sind plan geschliffen und mit einer Rille für die runde Gummidichtung versehen. Die notwendige Pressung erfolgt mit 12 Schrauben, welche in den aufgekitteten Flanschen aus Avionallegierung versenkt sind. Direkter Kontakt der Porzellankörper schien uns nicht ratsam wegen der Gefahr örtlicher Überbeanspruchung. Schwimmende Dichtungen würden aber eine genaue Zentrierung verunmöglichen, weshalb wir eine Blei-

zwischenlage benutzten. In Vorversuchen wurde die richtige Verteilung des Pressdruckes auf Gummi und Blei ermittelt. Dies führte auf einen Bleiquerschnitt von  $2,5 \times 0,3$  mm. Diese dünnen Bleiringe konnten durch Auswalzen von geschweissten Runddrahtlingen hergestellt werden. Sie bilden gleichzeitig einen Schutz gegen die Dämpfe der Gummidichtung. Diese besteht aus sammenvulkanisierter Bunarundschnur von 8 mm Durchmesser. Vor dem Einlegen wird sie mit Hahnfett leicht gefettet. Der elektrische Kontakt der Beschleunigungselektroden mit dem Aussenflansch wird durch breite Aluminiumstreifen von  $8\mu$  Dicke hergestellt, welche die beiden Dichtungsringe überqueren und ebenfalls gefettet sind. Bunaringe aus Rundschnur wurden noch bei vielen andern Dichtungsstellen verwendet und haben sich als durchaus zuverlässig erwiesen.

In Anbetracht der grossen Länge des Beschleunigungsrohres wurde die Zentrierung der Elektroden mit grosser Sorgfalt ausgeführt. Da die Befestigung an der Grundplatte des Tensators mittels eines kräftigen Basisringes erfolgt, muss die Zentrierung auf diesen genau horizontal gelagerten Ring bezogen werden. Die Achse wird durch eine Eisenwelle von 40 mm Durchmesser und 7 m Länge definiert, die unten in einem  $60^\circ$ -Kegel, oben in einer V-Nut drehbar geführt ist. Ein Fühlhebel mit 20-facher Übersetzung und sehr geringem Messdruck kann in jeder beliebigen Höhe angebracht werden. Mit Hilfe von sechs Schrauben wird die Elektrode zentriert und so Stufe auf Stufe gebaut.

Die Stirnflächen der Porzellankörper sind nicht genau parallel, so dass die Säule beim ersten Aufbau zu sehr von der Achse abwich. Daher wurde die Keilform jedes Körpers gemessen und seine Stellung so gewählt, dass sich die Fehler kompensierten.

Die Elektroden bestehen aus Stahl und sind zum Teil sehr massiv ausgeführt zwecks magnetischer Abschirmung. Messungen hatten nämlich ergeben, dass am Ort des Ionenstrahls magnetische Wechselfelder herrschen, die zum grössten Teil von den Hochspannungs-Transformatoren herrühren. Ihre Amplitude ist proportional der angelegten Primärspannung und erreicht Werte von einigen Oersted. Die Rechnung zeigt, dass selbst Ionen merkbar beeinflusst würden, von Elektronen zu schweigen. Eine gute magnetische Abschirmung (Faktor 100) ist bei Anwesenheit von elektrisch bedingten Luftspalten nur mit sehr grossem Aufwand zu erreichen<sup>12)</sup>. Deshalb wurde ein anderer Weg eingeschlagen, indem jeder zweite Transformator primär- und sekundärseitig umgepolt wurde, so dass sich auch die Richtung des magnetischen Streu-



feldes umkehrt. Eine vollkommene Kompensation würde erreicht, wenn die Ablenkung der Ionen in jeder Stufe alternierend gleich gross wären. Die hierzu erforderliche gesetzmässige Variation der Amplitude des Wechselfeldes kann durch eine gestufte Abschirmung annäherungsweise realisiert werden. Unmittelbar bei der Ionenquelle muss die Abschirmung am stärksten sein.

Die zwei obersten Elektroden sind so gelagert, dass sie nach Abheben der Ionenquelle ohne Demontage des Beschleunigungsrohres von oben zentriert und wenn nötig ausgewechselt werden können.

Diese Massnahmen wurden getroffen, um bei einer spätern Umstellung auf Elektronenbeschleunigung grosse Umbauten zu vermeiden. Sie würden sich nun auf Auswechslung der Gasentladung und Kompensation des Erdfeldes beschränken.

### Vakuumanlage.

Unmittelbar am Ende des Porzellanrohres ist ein geschweisstes T-Stück aus Stahl angeflanscht, welches zu den Vakuumpumpen führt. Vier 10 cm-Öldiffusionspumpen sind parallelgeschaltet, die

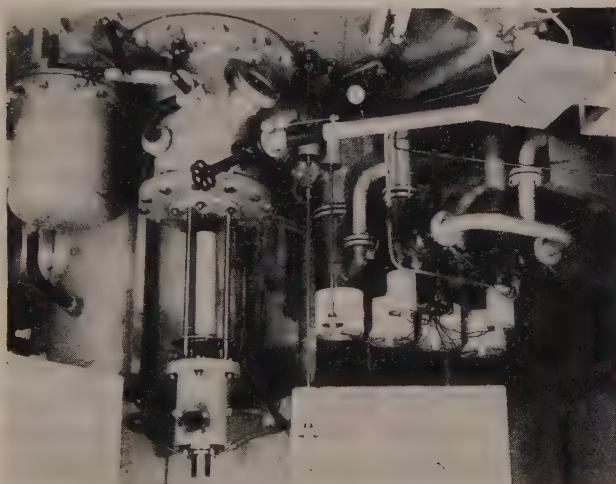


Fig. 4.

Targetkammer und Öldiffusionspumpen.

paarweise an 4 cm-Öldiffusionspumpen angeschlossen sind (Fig. 4). Der Vorvakuumbehälter von 150 l und die rotierende Ölpumpe sind mit 2,5 cm-Ventilen abtrennbar. Die Öldiffusionspumpen sind im eigenen Institut entwickelt worden<sup>13)</sup>. Mit einem Apiezon-B-



ähnlichen Öl gefüllt, leisten sie bei eingesetzter Ölfangtreppe je 150 bzw. 20 l/sec im interessierenden Druckbereich.

Zur Überwachung des Vakuums im Beschleunigungsrohr ist ein Kaltionisationsmanometer der Bauart Philips<sup>14)</sup> angebracht, das bei Verwendung eines relativ starken Magnetfeldes sehr zuverlässig arbeitet. Der höhere Druckbereich wird von einem Pirani-manometer erfasst. Mit einem weiteren Pirani kann der Vorvakuumdruck überwacht werden. In der Kühlwasser-Rückleitung ist ein Wasserwächter angebracht, welcher die Pumpenheizungen bei zu geringer Kühlwassermenge abschaltet.

### Targetkammer.

Die Targetkammer steht durch eine Öffnung von 8 cm Durchmesser in Verbindung mit dem Beschleunigungsrohr. Diese Öffnung kann mit Hilfe einer gummigedichteten Klappe abgeschlossen werden, so dass das Beschleunigungsrohr auch bei Targetwechsel in Betrieb gehalten werden kann. Der Ionenstrahl fällt dabei auf eine Quarzplatte und erzeugt einen Brennfleck, der durch ein Schauglas beobachtet wird. Zur schnellen Evakuierung kann die Targetkammer durch eine Umwegleitung von grossem Querschnitt direkt mit der rotierenden Vakuumpumpe verbunden werden, während die Diffusionspumpen auf den Vorvakuumbehälter arbeiten.

Die eigentliche Targetkammer ist durch einen 60 cm langen Federkörper mit der Klappenkammer verbunden. An dieser Stelle kann eine allenfalls notwendige magnetische Zerlegung des Ionenstrahls vorgenommen werden. Dieses Zwischenstück ist elektrisch isoliert und wird an ein negatives Potential gelegt, um den störenden Einfluss der Sekundärelektronen auf die Ionenstrommessung zu verringern.

Die Targetträger sind rasch auswechselbar und verschiedenartig geformt, um jeweils unter optimalen geometrischen Bedingungen bestrahlen zu können. Sie sind mit eingebauten Wasserkühlungen versehen, die einen guten Wärmeaustausch sichern und die Neutronen nur unwesentlich absorbieren. In der Targetkammer sind auch zwei elektrisch geheizte Öfen angebracht, welche über die Targetfläche geschwenkt werden können. Die zu verdampfende Substanz, meist Lithium, befindet sich in einem ringförmigen Behälter; der Dampf strömt durch einen zentralen Kanal auf die darunterliegende Targetfläche. Ferner steht uns eine massive Target aus Berylliumbronze (98,5% Be-Gehalt) von 3 cm Durchmesser zur Verfügung.

Mittels einer kleinen Quarzplatte kann die Lage des Brennflecks unmittelbar über der Target nochmals kontrolliert werden. Der auf die Target fallende Ionenstrom wird mit einem Lichtzeiger-Galvanometer gemessen.

### Vorläufiger Ausbau.

Der elektromechanische Teil der Anlage, ohne äusseren Ölmantel, war von der Micafil A.G. als Ausstellungsobjekt für die Schweizerische Landesausstellung 1939 erbaut worden. Hernach sollte die Anlage in den dazu vorgesehenen unterirdischen Räumlichkeiten des Physikalischen Instituts der ETH. aufgestellt werden. Infolge Ungunst der Zeit erlitten die Arbeiten aber einen fast zweijährigen Unterbruch. Die äussern Verhältnisse liessen es als richtig erscheinen, den Tensator vorerst nur für einen Betrieb in freier Luft mit stark reduzierter Spannung fertigzustellen, da der minimale Wandabstand der Hochspannungselektrode nur 125 cm beträgt. Die notwendigen Umänderungen nahmen wegen Personal-mangel und Materialbeschaffungsschwierigkeiten nochmals lange Zeit in Anspruch, so dass der regelmässige Betrieb erst im Herbst 1944 aufgenommen werden konnte.

Unter diesen Umständen können begreiflicherweise nur Bruchteile der erhofften Leistung erreicht werden. Wegen der bessern Zugänglichkeit war es dafür leichter, Mängel zu erkennen und zu beheben.

Im Dauerbetrieb kann je nach den atmosphärischen Verhältnissen eine Spannung von 640 bis 660 kV aufrechterhalten werden. Die Energie der beschleunigten Ionen ist etwa 30 kV höher, da sie im Mittel mit dieser Energie aus der Ionenquelle austreten. Der nutzbare Deuteronenstrom erreicht etwa  $100\ \mu\text{A}$  bei 40 mm Targetdurchmesser, und etwa  $70\ \mu\text{A}$  bei 18 mm. Mit der Li-D-Reaktion erhalten wir bei Verwendung der grössern Target etwa  $3 \cdot 10^9$  Neutronen pro sec, was roh genommen der Ausbeute einer 100 g-Radium-Beryllium-Neutronenquelle entspricht. Mit der Be-D-Reaktion erreicht man etwas mehr als die Hälfte dieser Intensität.

Die gesamte Strombelastung ist bedeutend höher, als die obigen Ionenströme erwarten lassen, nämlich 0,3 bis 0,4 mA, was zum grossen Teil von Elektronen herrührt. Durch geeignet polarisierte Fanggitter und kleine, am untern Ende des Beschleunigungsrohres eingebaute Oerstitmagnete konnte nur ein geringer Teil dieser Elektronen unschädlich gemacht werden. Die fast lineare Abhängigkeit des Elektronenstromanteils vom Gasdruck im Be-

schleunigungsrohr deutet darauf hin, dass die Auslösung der Elektronen im Gas und nicht an den Metallwänden erfolgt. Es ist bemerkenswert, dass unter diesen Umständen der Ionenstrahl doch so stark gebündelt bleibt, dass ein intensiver Kern von etwa 8 mm Durchmesser beobachtet wird. Bei ausgeschalteten Ablenkspannungen weicht dieser Kern nur einige Millimeter von der Rohrachse ab. Dabei wurde dieses Resultat mit einer rein geometrischen Zentrierung erreicht.

Der nutzbare Ionenstrom wird hauptsächlich durch die noch zulässige Gasnachströmung begrenzt. Der Druck in der Gasentladung beträgt etwa  $5 \cdot 10^{-2}$  mm Hg. Bei einem Kanal von 1,5 mm Durchmesser und 4 mm Länge wird am Pumpstutzen ein Druck von  $3 \cdot 10^{-5}$  mm Hg gemessen. Bei maximaler Belastung steigt er, wohl infolge Gasabgabe der Elektroden, um etwa 20%.

Die Anlage kann erst einige Stunden nach Einschalten der Pumpen den maximalen Ionenstrom liefern. Diese werden daher dauernd in Betrieb gehalten. Dann nimmt die Formierung etwa 10 Minuten in Anspruch. Im Dauerbetrieb ist die Konstanz der Betriebswerte sehr zufriedenstellend. Die Bedienung beschränkt sich auf gelegentliche Regulierung der Gasnachströmung zum Ausgleich thermischer Effekte.

Im Gegensatz zu den üblichen Konstruktionen sind beim Tensator die Endelektroden direkt, die Zwischenelektroden nur über kleine Schutzwiderstände mit den entsprechenden Kondensatorklemmen verbunden. Die diesbezüglichen Befürchtungen erwiesen sich bisher als unbegründet, da noch nie stromstarke Entladungen im Beschleunigungsrohr beobachtet werden konnten. Gegen äussere Überschläge ist der Tensator völlig unempfindlich, ein grosser Vorteil der Nadelgleichrichter.

Beim Entwurf der Anlage wurde zu wenig Bedacht auf den Strahlungsschutz der Bedienungsperson genommen. Die Röntgenstrahlung, die bei Deuteronenbetrieb auf dem Niveau der Hochspannungselektrode ganz merklich ist, erreicht zwar den Bedienungsort nur in ungefährlicher Masse. Die Neutronendosis hingegen ist trotz Verwendung von 60 cm dicken Wassertanks eher über der als erlaubt angesehenen Grenze<sup>15)</sup>. Für den Vollausbau wird eine Fernbedienungsanlage unumgänglich sein.

Der Tensator wird gegenwärtig nicht nur für die rein physikalische Forschung, sondern auch zur Erzeugung von aktiven Präparaten für die biologische und medizinische Forschung verwendet, trotzdem die Möglichkeiten beim jetzigen Ausbau eng beschränkt

sind und deshalb nur wenigen Wünschen Rechnung getragen werden kann.

An dieser Stelle möchten wir die Firmen in Erinnerung rufen, welche in grosszügiger Weise das Physikalische Institut der ETH. mit dieser Anlage ausgerüstet haben. Die Hauptlast trug die *Micafil A.-G.* in Zürich-Altstetten; von ihrem technischen Direktor, Prof. A. Imhof, stammen Idee und Gestaltung des elektrischen Teils. Auch die *Aluminium-Industrie A.-G.* Neuhausen, die *Aluminium-Schweisswerk A.-G.* Schlieren, die Aktiengesellschaft *Brown, Boveri & Cie* Baden und die *Porzellanfabrik Langenthal A.-G.* haben unentgeltlich umfangreiche Lieferungen besorgt, während der Jubiläumsfonds der ETH. und der Aluminiumfonds Neuhausen finanzielle Unterstützung gewährten. Wir sind ihnen allen zu grossem Dank verpflichtet.

## II. Messmethoden und Apparate.

Die Hauptaufgabe besteht darin, die Maximalenergie der  $\beta$ -Spektren zu bestimmen. Bei kurzlebigen Aktivitäten scheiden im allgemeinen die spektrographische Methode und die Wilsonkammer wegen Intensitätsgründen aus. Nur die Absorptionsmethode mit dem Zählrohr als Nachweismittel bleibt noch verwendbar. Dabei müssen Intensitätsunterschiede von mehr als 1:10 000 einwandfrei beherrscht werden, was nur mit Hilfe von Untersetzern gelingt.

Für präzise Messungen müssen die Zählverluste eines solchen Zählrohr-Untersetzer-Systems berücksichtigt werden. Fallen pro Zeiteinheit im Mittel  $n$  zeitlich statistisch verteilte Teilchen auf das Zählrohr (die Nachweiswahrscheinlichkeit eines einzelnen Teilchens sei 1 gesetzt), so wird vom Zählwerk nur die Zahl  $n'$  angezeigt. Nach den Gesetzen der Wahrscheinlichkeit ist folgendes Verhältnis zu erwarten<sup>16)17)</sup>:

$$\frac{n'}{n} = \frac{1}{p(1+n\tau_1)} \Pi(p, [\tau_2 - p\tau_1]n) \quad \text{für } \tau_2 > p\tau_1,$$

$$\frac{n'}{n} = \frac{1}{p(1+n\tau_1)} \quad \text{für } \tau_2 \leq p\tau_1.$$

$p$  ist der Untersetzungsfaktor (scale-of- $p$ ),  $\tau_1$  im wesentlichen die Zeitkonstante des Eingangskreises,  $\tau_2$  diejenige des Zählwerkes,  $\Pi(x, z)$  bedeutet die unvollständige Fakultät.

Als Untersetzereinheit verwenden wir die aus drei Trioden aufgebaute Schaltung nach LIFSCHUTZ<sup>18)19)</sup>. Bei passender Wahl



der Kopplungsglieder im Eingangsverstärker wird  $\tau_1$  nurmehr durch die Totzeit des Zählrohrs bestimmt, die experimentell gemessen werden kann. Wir verwenden dazu eine Anordnung mit Kathodenstrahlröhre nach STEVER<sup>20</sup>), die von Herrn RICKENBACH im Rahmen einer Diplomarbeit zur Untersuchung von Zählrohrenentladungen gebaut wurde. Unsere normalen Aluminiumzählrohre (24 mm  $\phi$ , 50 bis 70 mm empfindliche Länge, 0,2 mm Zählendraht aus rostfreiem Stahl, Füllung 75 mm Hg Argon + 15 mm Hg Äthylalkohol) weisen 80 Volt über der Einsatzspannung eine Totzeit von  $1,5 \cdot 10^{-4}$  sec auf.

Bei grösseren Überspannungen verringert sich die Länge der Totzeit erheblich, dafür machen sich die Nachentladungen zu stark bemerkbar. Mit einem hochauflösenden Untersetzter werden diese im Gegensatz zum normalen Zählrohrverstärker alle gezählt. Daher ist z. B. das Plateau eines Zählrohrs, mit und ohne Untersetzter gemessen, sehr verschieden. Von einem Plateau mit 400 Volt Ausdehnung ohne merkliche Neigung bleibt noch ein linearer Anstieg von 0,05% pro Volt über vielleicht 200 Volt übrig! Damit wird aber die Verwendung von glimmlampen- oder pentodenstabilisierten Spannungsquellen unumgänglich.

Die Zeitkonstante  $\tau_2$  des Zählwerks, etwa  $1,5 \cdot 10^{-2}$  sec in unserm Fall, spielt bei Verwendung von Untersetzern eine geringe Rolle, da man durch passende Wahl von  $p$  ihren Einfluss beliebig klein machen kann. In unserer Apparatur sind die Stufen  $p = 1, 4, 16$  und  $64$  verfügbar. Mit dem bekannten Glimmlämpcheninterpolator im Zweier-Zahlsystem kann die exakte Impulszahl im Eingangskreis abgelesen werden. Stosszahlen von  $10^5$  pro Minute werden noch einwandfrei beherrscht, ohne „warming-up“-Effekt<sup>21</sup>) und ohne Nachwirkungen auf den Nulleffekt. Die nach der Zwei-Quellen-Methode bestimmte globale Zeitkonstante stimmt jeweils überein mit der auf ganz andere Weise gewonnenen Totzeit des verwendeten Zählrohrs.

Zur Messapparatur gehört ferner ein Koinzidenzverstärker, der nach dem bewährten Schema der Rossi-Mischstufe arbeitet. Sein Auflösungsvermögen beträgt etwa  $1,5 \cdot 10^{-6}$  sec. Über kleine Kapazitäten sind vor der Mischstufe Untersetzter angekoppelt, so dass die Einzel- und Koinzidenzstosszahlen gleichzeitig gemessen werden können.

Ungemein brauchbar erwies sich ein Synchronmotor, der die Registrierung in regelmässigen, zwischen 2 sec und 10 min wählbaren Intervallen für kurze Zeit unterbricht, zwecks Ablesung und Absorberwechsel.

Maximalenergie der  $\beta$ -Spektren.

Die Absorptionsmethode der Energiemessung wurde besonders von FEATHER<sup>22)23)</sup> entwickelt. Sie beruht auf dem Begriff der Reichweite der  $\beta$ -Strahlen und setzt diese in Beziehung zur Maximalenergie in der bekannten FEATHER'schen Relation

$$R = 0,543 E - 0,160 \quad R \text{ in g/cm}^2, \quad E \text{ in MeV } (> 0,7).$$

Allerdings kann die Reichweite nur in günstigsten Fällen direkt bestimmt werden. Sonst nimmt man nach dem Vorschlag von FEATHER einen annähernd affinen Verlauf der vorliegenden Absorptionskurve und derjenigen der Eichsubstanz RaE an. Dann kann man eine Reihe angenäherter Reichweiten berechnen, die eine Extrapolation auf die wahre Reichweite zulassen. Das Verfahren wird um so zuverlässiger, je weiter die Absorption verfolgt werden kann.

In Anbetracht der wenig homogenen Grundlagen und offenkundiger Diskrepanzen (bei  $P^{32}$  z. B.) unternahmen wir eine Neubestimmung der Konstanten mit Hilfe der Eichsubstanzen RaE,  $P^{32}$ ,  $UX_2$ , und versuchten durch Messungen an  $Cl^{38}$  einen Eichpunkt bei hohen Energien zu gewinnen.

Wir verwenden zwei verschiedene Anordnungen. Bei der ersten befindet sich die Quelle (normale Ausdehnung 7 cm  $\times$  2,4 cm, bis 1 cm Dicke) zwischen zwei Zählrohren. Ein besonderer Halter erlaubt die exakte Fixierung von Filterblättern obiger Grösse. Zwischen  $\beta$ -Zählrohr und Quelle können bis zu 11 mm dicke ebene Aluminiumabsorber von 9  $\times$  7 cm eingeführt werden. Das  $\gamma$ -Zählrohr auf der andern Seite der Quelle ist durch Bleiabsorber geschützt, denen aus später zu erörternden Gründen bei nicht sehr dicken Quellen ein Preßspanabsorber vorgeschaltet wird. Für die Messung der Energie von  $\gamma$ -Quanten mit Koinzidenzen nach der Methode von BOTHE<sup>29)</sup> kann noch ein drittes Zählrohr angebracht werden, das vom zweiten durch ebene Absorber bis zu 6,5 mm Dicke getrennt ist. Alle drei Zählrohre sind durch Aluminium- und Bleibarrieren sorgfältig vor Streuelektronen geschützt. Die ganze Anordnung wird von einem Kasten umgeben, dessen dicke Bleiwände mit Preßspan allseitig ausgekleidet sind.

Die zweite Anordnung, die hauptsächlich zu Messungen an Flüssigkeiten dient, hat Zylindersymmetrie. Das  $\beta$ -Zählrohr wird von der ringförmigen Quelle so umgeben, dass sich rohrförmige Absorber mit Wandstärken bis zu 6,5 mm einführen lassen. Auf der Aussenseite werden bis zu acht bleigeschützte  $\gamma$ -Zählrohre angebracht.

Mit  $P^{32}$ -Präparaten wurden zunächst die Faktoren ermittelt, die einen Einfluss auf die Form der Absorptionskurve ausüben. Quellengrösse, empfindliche Länge des Zählrohrs, Abstand des Absorbers von der Quelle sind durchaus von Belang. Den grössten Einfluss aber hat die Präparatunterlage. Versieht man ein dünnes Präparat ( $3 \text{ mg/cm}^2$ ) mit Unterlagen aus Preßspan, Aluminium, Messing oder Blei, so wird die Intensität wegen Rückstreuung der Elektronen scheinbar erhöht, und zwar in obiger Reihenfolge um 4, 10, 24 und 44%. Die zugehörigen, logarithmisch aufgetragenen Absorptionskurven laufen bei grössern Absorberdicken wieder parallel; die Verschiebung entspricht gerade der anfänglichen Intensitätserhöhung. Darin spiegelt sich die in der  $\beta$ -Spektrometrie wohlbekannte Tatsache, dass die rückgestreuten Elektronen grösstenteils weich sind. Da für die  $\beta \gamma$ -Koinzidenzmessungen ein rückseitiger Bleiabsorber unbedingt nötig ist, schalten wir seine schädliche Wirkung durch eine Preßspanverkleidung von  $0,3 \text{ g/cm}^2$  weitgehend aus.

Der Unterschied zwischen ebener und zylindrischer Anordnung ist besonders bei sehr dünnen und sehr dicken Absorbern bemerkbar. Infolge des im Mittel schiefern Durchtritts nimmt die Absorption anfänglich schneller, in der Nähe der Reichweite aber langsamer zu als im ebenen Fall. Absorber gleicher Wandstärke, aber verschiedenen Durchmessers schwächen nicht im gleichen Masse.

All dies bezieht sich auf die Form der Absorptionskurve. Wenn aber für  $\beta$ -Strahlen eine Reichweite im strengen Sinne des Wortes existiert, so darf sie keinesfalls von der Geometrie abhängen, sobald irgendwo eine Verbindungsgerade von Quelle zu Detektor den Absorber senkrecht durchsetzt.

In mehreren sorgfältigen Messreihen bestimmten wir die Absorption der Elektronen von dünnen RaE-,  $P^{32}$ - und  $UX_1 + UX_2$ -Quellen aus etwa fünf Millionen Zählrohrstössen. Die letzten brauchbaren Messpunkte liegen bei 2 bis  $5 \cdot 10^{-5}$  der Anfangsintensität, also schon ganz im Gebiet der innern und äussern Bremsstrahlung<sup>24</sup>), und dennoch können wir die Reichweite nicht ohne eine gewisse Willkür angeben, besonders bei RaE, weil der Kurvenverlauf eine Extrapolation erheischt. Eine einfache Vorstellung besteht darin, die Kurve in der logarithmischen Darstellung mit konstanter Krümmung bis zur senkrechten Tangente fortzusetzen. So finden wir die Reichweiten

RaE	$E_{\max}$ 1,17 MeV	$R$ $0,512 \pm 0,005 \text{ g/cm}^2$
$P^{32}$	1,72	$0,815 \pm 0,005$
$UX_2$	2,32	$1,168 \pm 0,006$



Die  $P^{32}$ -Reichweite bleibt fast ungeändert, während die beiden andern wesentlich höher rücken. Alle drei liegen gut auf der Geraden

$$R = 0,571 E - 0,161 .$$

Reichweitemessungen im Gebiet kleiner Energien wurden kürzlich von BORN und SEELMANN<sup>25)</sup> veröffentlicht, doch ohne genauere Angaben. Ihre Messpunkte schliessen sich befriedigend an im Gebiet um 1 MeV, darunter beginnen die Abweichungen von der linearen Beziehung.

#### Messungen an $Cl^{38}$ .

Im Gebiet der hohen Energien ist die Gültigkeit der FEATHERschen Relation noch nicht geprüft worden. Als Eichpunkt kommt gegenwärtig einzig das Chlorisotop 38 in Betracht, dessen  $\beta$ -Maximalenergie von WATASE und ITOH<sup>26)</sup> spektrometrisch zu 4,99 MeV bestimmt wurde. Dessen Nachteile sind freilich gross: Es liegen zwei Teilspektren vor, die allerdings wenig intensiv sind. Die  $\gamma$ -Strahlung macht die Reichweitebestimmung aber sehr schwierig. Über die Gestalt der Absorptionskurve erhält man jedoch interessante Aufschlüsse.

Zur Gewinnung von  $Cl^{38}$  bestrahlten wir  $CCl_4$  im Wasserbad mit Be-D-Neutronen, deren Energie zur Bildung von  $Cl^{34}$  nicht ausreicht. Die aktivierten Atome wurden nach dem SZILARD-CHALMERS-Prozess als  $AgCl$  gefällt, derart, dass die Dicke der Quelle unterhalb  $10 \text{ mg/cm}^2$  lag. Die Absorptionskurve ist in Fig. 5 als stark ausgezogene Linie ersichtlich; der statistische Fehler ist nur wenig grösser als die Strichdicke. Aus dem veröffentlichten  $Cl^{38}$ -Spektrum haben wir Maximalenergien und Verzweigungsverhältnis der Teilspektren nochmals bestimmt:  $\beta_1$  52% 4,96 MeV,  $\beta_2$  16% 2,82 MeV,  $\beta_3$  32% 1,15 MeV, hierauf die zu  $\beta_2$  und  $\beta_3$  gehörenden Absorptionskurven phosphorähnlich angenommen und subtrahiert. Die strichpunktierte Kurve ist das Resultat. Bei der Subtraktion des  $\gamma$ -Untergrundes müsste korrekterweise die Änderung der  $\gamma$ -Empfindlichkeit durch die vorgeschalteten Absorber berücksichtigt werden. Dieser Effekt ist einerseits schwer zu erfassen, anderseits nur in Sonderfällen numerisch von Bedeutung, so dass wir einfachheitshalber nur die Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in Rechnung stellen. Die so gewonnene Kurve  $\beta_1$  stellt also die Absorption eines  $\beta$ -Spektrums mit 4,96 MeV Maximalenergie dar. Die Extrapolation, die zur Reichweite von  $2,70 \text{ g/cm}^2$  führt, ist freilich viel willkürlicher als bei den andern Eichsub-



stanzen, und ein Fehler von  $0,05 \text{ g/cm}^2$  ist nicht ausgeschlossen. Der angegebene Wert passt gut in die neue Relation.

Die Absorptionskurve, welche WATASE und ITOH angeben, stimmt mit der unsrigen recht genau überein, abgesehen von der  $\gamma$ -Intensität. Ihr Wert für die Reichweite,  $2,47 \text{ g/cm}^2$  ist aber aus dem Fusspunkt der linearen Absorptionskurve bestimmt. Dieses Verfahren führt aber durchwegs zu einer groben Unterschätzung der Reichweite. Davon kann man sich bei Versuchen

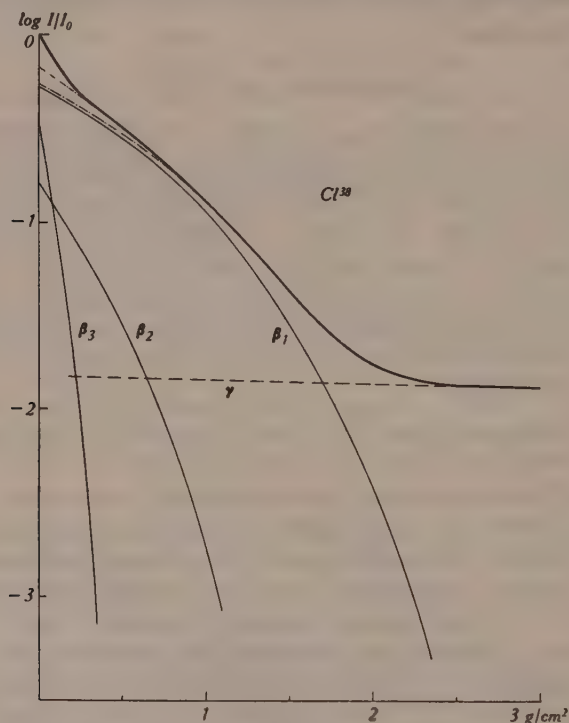


Fig. 5.

Absorptionskurve der Strahlung von  $\text{Cl}^{38}$

mit  $\text{P}^{32}$  (mit oder ohne künstlichen  $\gamma$ -Untergrund) leicht überzeugen.

In der Tabelle 1 sind für die vier Eichsubstanzen die Relativwerte  $d_n/R$  der Aluminiumabsorberdicken  $d_n$  angegeben, welche in unserer Anordnung die Anfangsintensität auf den  $2^n$ -ten Teil herabsetzen. Die Unterschiede im Verlauf sind so gross, dass das FEATHER'SCHE Vergleichsverfahren mit RaE als Eichsubstanz unzweckmässig erscheint. Unsere Erfahrung mit einer Reihe von

Absorptionskurven weisen eindeutig darauf hin, dass die Unterschiede zufolge individueller Besonderheiten der  $\beta$ -Spektren stark zurücktreten gegenüber einer ausgeprägten systematischen Abhängigkeit von der Maximalenergie. Es liegt nun nahe, im Energie-Absorbergewicht-Diagramm nicht nur für die Reichweite, sondern für jedes  $n$  eine Gerade einzuzichnen, welche durch die entsprechenden Eichpunkte von P<sup>32</sup> und Cl<sup>38</sup> bestimmt ist. Den  $d_n$ -Werten eines unbekannten Spektrums entspricht dann auf der zugehörigen Geraden eine Energie  $E_n$ , welche mit wachsendem  $n$  der Maximalenergie des  $\beta$ -Spektrums zustrebt. Dieser direkte Weg ist frei von den Unsicherheiten der Reichweite, und der Gang der  $E_n$  ist bei einfachen Spektren nur ganz gering. Damit sind aber die Voraussetzungen geschaffen für eine quantitative Analyse von Absorptionskurven komplexer  $\beta$ -Spektren.

Tabelle 1.

$n$	RaE	$d_n/R$		
		P <sup>32</sup>	UX <sub>2</sub>	Cl <sup>38</sup>
1	0,10 <sub>4</sub>	0,14 <sub>6</sub>	0,14 <sub>2</sub>	0,20 <sub>3</sub>
2	0,20 <sub>0</sub>	0,26 <sub>7</sub>	0,26 <sub>0</sub>	0,34 <sub>8</sub>
3	0,29 <sub>0</sub>	0,36 <sub>8</sub>	0,36 <sub>1</sub>	0,45 <sub>3</sub>
4	0,37 <sub>5</sub>	0,46 <sub>5</sub>	0,45 <sub>0</sub>	0,54 <sub>2</sub>
5	0,45 <sub>3</sub>	0,54 <sub>6</sub>	0,53 <sub>0</sub>	0,61 <sub>5</sub>
6	0,52 <sub>6</sub>	0,61 <sub>5</sub>	0,59 <sub>7</sub>	0,68 <sub>0</sub>
7	0,59 <sub>1</sub>	0,67 <sub>8</sub>	0,65 <sub>7</sub>	0,73 <sub>4</sub>
8	0,65 <sub>1</sub>	0,73 <sub>3</sub>	0,71 <sub>2</sub>	0,78 <sub>0</sub>
9	0,70 <sub>6</sub>	0,78 <sub>0</sub>	0,76 <sub>1</sub>	0,82 <sub>4</sub>
10	0,75 <sub>8</sub>	0,82 <sub>3</sub>	0,80 <sub>5</sub>	
11	0,80 <sub>5</sub>	0,86 <sub>4</sub>	0,84 <sub>4</sub>	
12	0,85 <sub>0</sub>	0,89 <sub>6</sub>	0,88 <sub>1</sub>	
13	0,89 <sub>0</sub>	0,92 <sub>5</sub>	0,91 <sub>5</sub>	
14	0,92 <sub>7</sub>	0,95 <sub>0</sub>	0,94 <sub>5</sub>	
$R$	0,512	0,815	1,168	2,70

Das Problem der Form der Absorptionskurve in ihrer Abhängigkeit von der Maximalenergie und der Gestalt des  $\beta$ -Spektrums ist übrigens der rechnerischen Behandlung zugänglich. Darüber soll in einer spätern Mitteilung berichtet werden.

Unter Umständen ist es nicht möglich, dünne Quellen zu verwenden, so dass eine Methode benötigt wird, die von der Absorptionskurve  $I(d)$  einer dicken Quelle (Dicke  $t$  in Aluminium-

äquivalent) auf jene einer dünnen Quelle  $I_0(d)$  schliessen lässt. Nun gilt aber die Beziehung

$$I(d) = \frac{1}{t} \int_a^{d+t} I_0(a) da.$$

Daraus kann man die zu erwartenden Korrekturen nach dem Vorgang von FEATHER<sup>23)</sup> für typische Fälle berechnen; doch zeigt es sich, dass sie stark von der Kurvenform und von  $n$  abhängen. Ausser für geringe Dicken ( $t/R < 0,1$ ) ist das Verfahren daher unpraktisch und zudem beschränkt auf einfache Spektren. Wir ziehen deshalb meist vor, die differentielle Fassung obiger Formel zu benützen:

$$I_0(d) = I_0(d+t) - t \left[ \frac{d}{da} I(a) \right]_a$$

und die  $I_0$ -Kurve von grossen Absorberdicken her punktweise aufzubauen. Der erste Term rechts ist meist klein gegenüber dem zweiten.

$\beta$ - $\gamma$ - und  $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenzmessungen sind unumgänglich zur Aufklärung des Zerfallschemas<sup>27)28)</sup>. Bei komplexen  $\beta$ -Spektren ist die Absorptionskurve der Koinzidenzen identisch mit jener des Teilspektrums, wodurch die Analyse sehr erleichtert wird. Bei Kenntnis der wirksamen Raumwinkel können mehrere Kontrollen vorgenommen werden.

Die Messung der Energie der  $\gamma$ -Quanten nach der Methode von BOTHE<sup>29)</sup> liefert eine weitere Kontrollmöglichkeit, sofern der Zerfall des instabilen Kerns nicht zu kompliziert vor sich geht. Die Schwierigkeit liegt hier hauptsächlich im Fehlen geeigneter Eichsubstanzen, denn es ist zu erwarten, dass diese Absorptionskurven noch mehr als bei  $\beta$ -Strahlen von der geometrischen Anordnung abhängen.

### III. Messungen an Chlor.

Die mit schnellen Neutronen an Chlor induzierten Aktivitäten wurden genauer untersucht, um die von HUBER, LIENHARD und WÄFFLER<sup>30)</sup> gefundene 14,7 sec-Aktivität zuordnen zu können. Dabei wurde eine bisher nicht beobachtete 5 min-Aktivität gefunden, die dem  $S^{37}$  zuzuordnen ist. Da ihre Kenntnis zur Auswertung der kürzeren Aktivität notwendig ist, sei sie an erster Stelle beschrieben.

#### $S^{37}$ .

Bestrahlt man eine chlorhaltige Substanz, etwa  $C_2Cl_6$  während 5 min mit schnellen Li-D-Neutronen, so erhält man die in

Fig. 6 dargestellte Abklingkurve der induzierten Aktivität. Nach Subtraktion der bekannten Aktivitäten von  $Cl^{34}$ ,  $Cl^{38}$ ,  $P^{32}$ ,  $S^{35}$  und der kurzen von genauer 12,4 sec HWZ bleibt eine rein exponentiell abfallende Aktivität von 5 min HWZ übrig. Die chemische Abtrennung ergibt, dass es sich um ein Schwefelisotop handelt. Das feste KCl oder NaCl wird nach dem Bestrahlen gelöst, etwas  $H_2SO_4$  als Trägersubstanz und  $BaCl_2$  als Fällungsmittel beigegeben. Das ausfallende Bariumsulfat wird als dünne

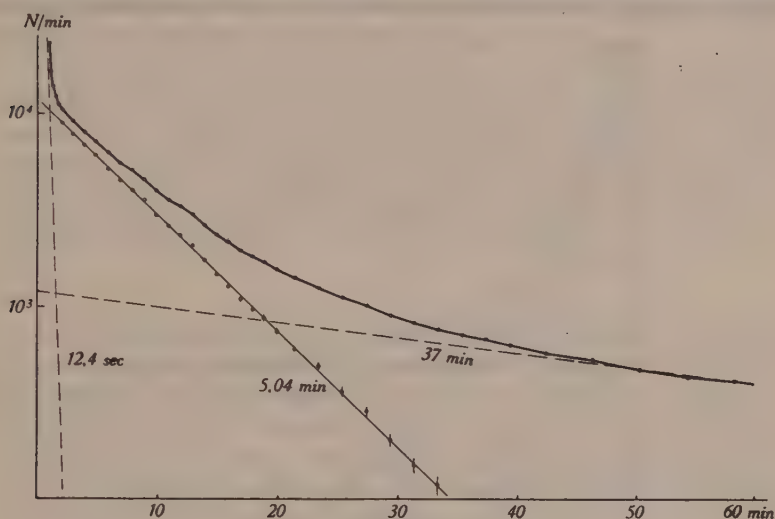


Fig. 6.

Aktivität von  $C_2Cl_6$ , 5 min mit Li-D-Neutronen bestrahlt.

Schicht auf einem zur ebenen Anordnung passenden Filterblatt  $7 \times 2,4$  cm aufgefangen. Ausser einer leichten Erhöhung des Null-effektes, die vom langlebigen  $S^{35}$  herrühren dürfte, findet sich eine Aktivität von  $5,04 \pm 0,02$  min Halbwertszeit. Zur Kontrolle wurde auch eine Fällung auf Phosphor durchgeführt. Es zeigte sich keine entsprechende Aktivität.

Die Zuordnung hängt von derjenigen des 88 Tage-Schwefels ab, der auch durch den  $n, p$ -Prozess aus dem Chlor gewonnen wird, das die beiden stabilen Isotope 35 und 37 enthält. Während die lange Aktivität früher eher dem  $S^{37}$  zugesprochen wurde<sup>31)</sup> hat KAMEN<sup>32)</sup> starke Argumente dafür beigebracht, dass sie zum  $S^{35}$  gehört. Wir versuchten, die 5 min-Aktivität noch auf andere Weise zu erhalten, nämlich durch Neutroneneinfang an Schwefel, der ja unter andern auch die stabilen Isotope 34 und 36 enthält,



hatten aber keinen Erfolg. Beachtet man die relativen Häufigkeiten dieser Isotope, 4,2% bzw. 0,016%, so deutet auch dieses Resultat auf eine Zuordnung zu  $S^{37}$  hin. Die Möglichkeit einer Kernisomerie fällt angesichts des gleich zu besprechenden komplexen  $\beta$ -Spektrums ausser Betracht.

Die Absorptions-, Koinzidenz- und  $\gamma$ -Energiesmessung wurde in der ebenen Anordnung an der chemisch abgetrennten Aktivität durchgeführt. Es waren mehr als 30 Messreihen notwendig, um bei der kurzen HWZ eine ausreichende Genauigkeit zu erhalten.

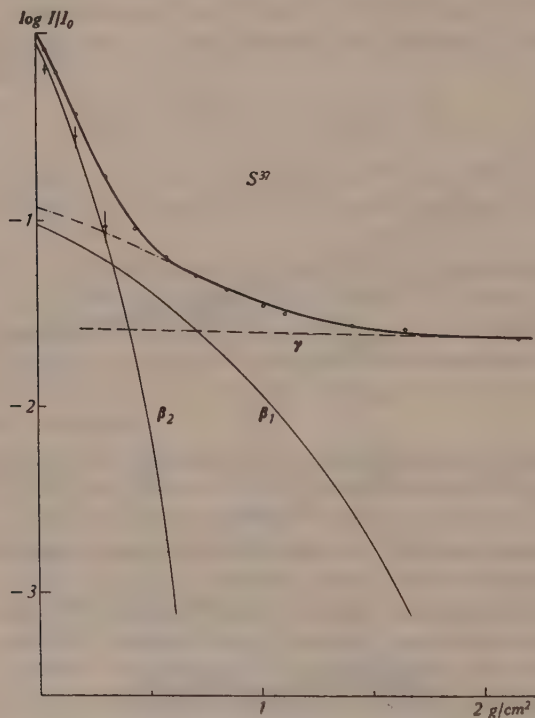


Fig. 7.

Absorptionskurve der Strahlung von  $S^{37}$ .

Die Messpunkte der Absorptionskurve sind in der halblogarithmischen Darstellung Fig. 7 als kleine Kreise eingetragen, deren Grösse etwa dem statistischen Fehler entspricht. Man erkennt sofort, dass eine starke  $\gamma$ -Strahlung und ein komplexes  $\beta$ -Spektrum vorliegen. Die Koinzidenzmessungen, durch Kreuze + bezeichnet, bestätigen diese Auffassung. Ihre Genauigkeit ist aber so gering, dass man das Teilspektrum besser durch Analyse der Absorptionskurve bestimmt:

Die stark ausgezogene Kurve ist die Summe der drei dünnen Teilabsorptionskurven, die einem normalen  $\beta$ -Spektrum von 4,3 MeV Maximalenergie ( $\beta_1$ ) mit 10% Anteil, einem normalen Teilspektrum von 1,6 MeV ( $\beta_2$ ) mit 90% Anteil und dem  $\gamma$ -Untergrund zukommen. Die Übereinstimmung mit den Messpunkten ist sehr befriedigend. Abweichungen der Spektren von der Normalform machen sich hauptsächlich im Anfangsteil der Absorptionskurve bemerkbar. Dies bedeutet, dass die Maximalenergie wenig, das Verzweigungsverhältnis aber empfindlich davon beeinflusst wird. Dieses dürfte jedenfalls zwischen 8 und 12% liegen.

Die Differenz der beiden Maximalenergien entspricht einer  $\gamma$ -Strahlung von 2,7 MeV. Die Energiemessung nach der Methode von BOTHE ergibt aus der Halbwertsdicke 2,6 MeV<sup>33)</sup>, aus der Grenzdicke der linear aufgetragenen Absorptionskurve 2,9 MeV<sup>34)</sup><sup>35)</sup>. Die  $\gamma$ -Strahlung scheint also homogen zu sein, und die Analyse der Absorptionskurve findet eine gute Bestätigung.

#### P<sup>34</sup>.

Bei der von HUBER, LIENHARD und WÄFFLER<sup>30)</sup> gefundenen kurzen Aktivität handelte es sich zunächst darum, die Halbwertszeit genauer zu bestimmen und sie zu vergleichen mit derjenigen, die nach CORK und MIDDLETON<sup>36)</sup> mit schnellen Neutronen in Schwefel induziert wird. Die bestrahlten Substanzen waren  $C_2Cl_6$ ,  $CCl_4$ ,  $CS_2$  und fester Schwefel. Die Halbwertszeiten wurden nach der Methode von PEIERLS<sup>37)</sup> berechnet und stimmen gut überein:  $12,45 \pm 0,15$  sec aus den Chlormessungen,  $12,3 \pm 0,2$  sec aus den Schwefelmessungen. Der schlüssige Beweis, dass es sich um dieselbe Aktivität handelt, muss durch chemische Abtrennung der in Chlor induzierten Aktivität erbracht werden.

Die kurze Lebensdauer erforderte besonders rasche Fällungsmethoden. Herrn Dr. E. JACOBI sind wir zu Dank verpflichtet für die Ausarbeitung und Durchführung. Nach vielen Versuchen gelang es, bei der oben beschriebenen Schwefelfällung die Zeitspanne zwischen Ende Bestrahlung und Messbeginn auf etwa 30 Sekunden zu verkürzen, indem die kochende Salzlösung bestrahlt wurde. Ausser der 5 min-Aktivität von  $S^{37}$  konnte nur eine schwache Aktivität von etwa 7 sec HWZ gefunden werden. Diese trat auch bei Kontrollbestrahlungen von KOH, NaOH und sogar von dest. Wasser allein auf und konnte durch Auswaschen der Filter fast zum Verschwinden gebracht werden. Es dürfte sich dabei um den Prozess  $O^{16}(n, p)N^{16}$  handeln, wobei ein Teil der gebildeten N-Atome im Filter zurückgehalten wird.

Die Phosphorfällung erfolgte nach der Molybdatmethode. Nach Bestrahlung der kochenden KCl- oder NaCl-Lösung wurde Natriumphosphat als Trägersubstanz, etwas Salpetersäure als Oxydationsmittel und die Fällungssubstanz (saure Lösung von Ammoniummolybdat und Ammoniumnitrat) zugegeben. Wegen der bessern Filtrierbarkeit des Niederschlags konnte der Zeitverlust auf etwa 25 sec gesenkt werden. Hier wurde nun die 12,4 sec-Aktivität wiedergefunden. Auch bei der Phosphorfällung konnte bei der Kontrolle mit KOH die Anwesenheit der erwähnten kurzen Fremdaktivität festgestellt werden. Nach der entsprechenden Korrektur fanden wir folgende Halbwertszeit: aus KCl  $12,3 \pm 0,4$  sec, aus NaCl  $12,6 \pm 0,4$  sec. Das gewogene Mittel aus allen Bestimmungen liegt bei

$$\underline{12,40 \pm 0,12 \text{ sec.}}$$

Die Zuordnung dieser Aktivität ist nun eindeutig möglich: sie wird aus dem Chlor durch den  $n, \alpha$ -Prozess gebildet. Dieser führt von  $\text{Cl}^{35}$  auf den wohlbekannten  $\text{P}^{32}$ , so dass nur die Möglichkeit  $\text{Cl}^{37} (n, \alpha) \text{P}^{34}$  besteht. Beim Schwefel führt der  $n, p$ -Prozess zu  $\text{P}^{34}$ .

Bei so kurzer Lebensdauer sind Absorptionsmessungen nach der gewöhnlichen Methode kaum mehr durchzuführen, da die Stosszahl pro Bestrahlung gering ist und der Absorberwechsel zu viel Zeit in Anspruch nimmt. Wir bauten daher eine Einrichtung für kontinuierliche Bestrahlung flüssiger Substanzen. Aus einem geschlossenen Vorratsgefäss, das unter Druck gesetzt wird, gelangt die Flüssigkeit in das Bestrahlungsgefäss von  $250 \text{ cm}^3$  Volumen, dann durch eine 9 m lange Leitung von geringem Querschnitt zur neutronengeschützten Messapparatur. Bei konstanter Durchflussmenge steht dort eine zeitlich konstante Anzahl aktiver Atome zur Verfügung.

Bei Vorgabe gewisser äusserer Bedingungen (HWZ, Dichte und Zähigkeit der Flüssigkeit, Druckgefälle in der Leitung, Begrenzung der Bestrahlungskammer gegen die Neutronenquelle) existiert ein optimaler Leitungsquerschnitt und ein zugehöriges Bestrahlungsvolumen, die angenähert berechnet werden können. Glücklicherweise ist das Optimum sehr flach. Bei Variation des Druckes kann eine bestimmte Anlage für ein ziemlich grosses HWZ-Intervall gebraucht werden.

Zwei Flüssigkeiten standen zur Wahl:  $\text{CS}_2$  und  $\text{CCl}_4$ . Der Vorteil von  $\text{CS}_2$  liegt in der Abwesenheit von störenden kurzen Aktivitäten, da die Energie unserer Li-D-Neutronen zur Bildung von  $\text{S}^{31}$  nicht ausreicht. Die Vorteile von  $\text{CCl}_4$ , vierfache Ausbeute und ungefährliche Handhabung, schienen uns aber so wesentlich,

dass wir die störenden Aktivitäten  $S^{37}$ ,  $Cl^{34}$  und  $Cl^{38}$  in Kauf nahmen. Sie sind nämlich relativ schwach und können in folgender Weise berücksichtigt werden: Gegen Ende einer Messreihe, nach Durchfluss von etwa 12 l  $CCl_4$  wird die Messkammer abgetrennt und die Abfallkurve der darin verbliebenen Flüssigkeit aufgenommen und analysiert, so dass auf die im stationären Zustand vorhandenen, zu  $S^{37}$  und  $Cl^{34} + Cl^{38}$  gehörenden Aktivitäten zurückgeschlossen werden kann. Der Gehalt an  $P^{32}$ , der im Laufe der Zeit zunimmt, wird aus Differenzmessungen gegen den Nulleffekt bei Füllung mit unbestrahltem  $CCl_4$  bestimmt, während die sehr weiche  $\beta$ -Strahlung von  $S^{35}$  in den vorhandenen Folien völlig absorbiert wird.

Die zu den obigen vier Aktivitäten gehörenden Absorptionskurven,  $\gamma$ -Intensitäten und Koinzidenzraten wurden mit dem nämlichen zylindersymmetrischen Messgefäß bestimmt. Das  $CCl_4$  strömt mit tangentialem Einlauf in die hohlzylinderförmige Messkammer von 70 mm Höhe, die das  $\beta$ -Zählrohr umgibt und deren innere Wand aus Kupferfolie besteht. Die Schichtdicke von 6,3 mm entspricht  $1,03 \text{ g/cm}^2$  Aluminiumäquivalent.

Um die Koinzidenzrate zu erhöhen, brachten wir auf der Aussenseite der Kammer sechs parallelgeschaltete Bleizählrohre an. Wie die folgende Tabelle 2 zeigt, sind die Verhältnisse bei den

Tabelle 2.

Mittlere Stosszahlen pro min, ohne Absorber.

	$\beta$	$\gamma$	Koinz.
$P^{34}$	30000	380	19
$S^{37}$	960	250	3,0
$Cl^{34+38}$	100	3	0,0
$P^{32}$	400	—	—
Nulleff.	40	200	$1,4 + 0,6$

$\beta$ -Strahlen sehr günstig, während die  $\gamma$ -Strahlung der fremden Aktivitäten stärker hervortritt. Der Nulleffekt der Koinzidenzen ist aufgespalten in zwei Teile: Im ersten sind die zufälligen und die Höhenstrahlkoinzidenzen enthalten, im zweiten die bei der vorliegenden geometrischen Anordnung relativ häufigen Koinzidenzen, welche durch COMPTON-Streuung der  $\gamma$ -Quanten auftreten. Es ist nicht völlig auszuschliessen, dass sich darunter auch echte  $\gamma$ - $\gamma$ -Koinzidenzen befinden.

Fig. 8 zeigt die dem  $P^{34}$  zukommende Absorptionskurve. Es ist eine schwache  $\gamma$ -Strahlung vorhanden. Der glatte Verlauf der



vom  $\gamma$ -Untergrund befreiten Kurve lässt auf den ersten Blick kein Teilspektrum erkennen, wenn nicht die Absorptionskurve der Koinzidenzen (im linken untern Teil dargestellt) eindeutig dafür spräche. Es darf aber nicht vergessen werden, dass es sich um die Absorptionskurve einer dicken Quelle handelt. Die Umrechnung auf dünne Quelle erfolgte nach dem im II. Teil angegebenen rechnerischen Verfahren. Dann ergibt sich zunächst die obere Grenze des Teilspektrums zu 3,2 MeV. Die Analyse der

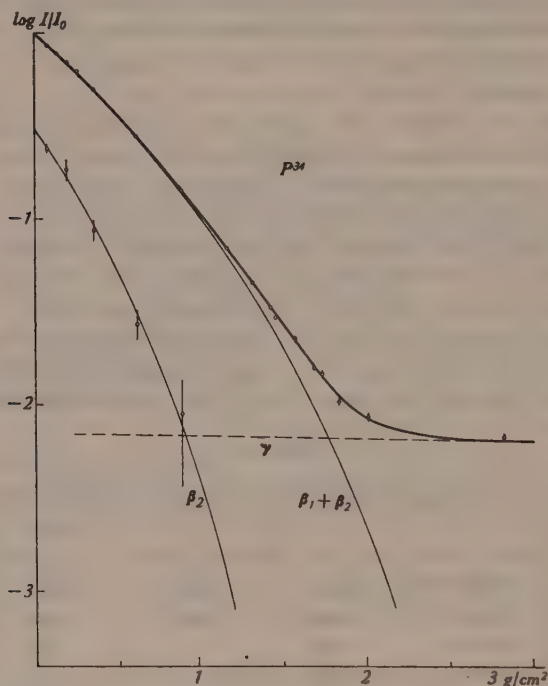


Fig. 8.

Absorptionskurve der Strahlung von P 4 (Dicke Quelle).

$\beta$ -Absorptionskurve liefert für den direkten Übergang bei Annahme eines  $\text{Cl}^{38}$ -ähnlichen Spektrums eine Maximalenergie 5,1 MeV, während für das Verzweungsverhältnis ein gewisser Spielraum bleibt: etwa 30% der Elektronen sollten danach dem Teilspektrum angehören.

Dieser Prozentsatz kann ganz unabhängig davon aus der  $\beta$ - und  $\gamma$ -Zählrate bestimmt werden, wenn die  $\gamma$ -Empfindlichkeit des Zählrohres bekannt ist. Nach eigenen Messungen beträgt diese für  $\gamma$ -Quanten von 2 MeV 0,011. Berücksichtigt man noch den

bei dicken Quellen auftretenden geringen Unterschied des effektiven Raumwinkels für  $\beta$ - und  $\gamma$ -Strahlen, so erhält man 27%. Eine entsprechende Rechnung kann man auch für die  $\gamma$ -Zählrohre ausführen, wenn man zuvor deren wirksamen Raumwinkel mit Hilfe der Formeln von NORLING<sup>38)</sup> berechnet hat. Wegen dieser zusätzlichen Unsicherheit ist dem so erhaltenen Wert von 20% weniger Gewicht beizulegen. Für die Kopplung zwischen  $\gamma$ -Stößen und Koinzidenzen, wo der Raumwinkel des  $\beta$ -Zählrohres wesentlich eingeht, erhält man den etwas zu grossen Wert 1,12.

Wegen der Anwesenheit von  $S^{37}$  mit den vielen 2,7 MeV-Quanten hat es keinen Sinn, eine  $\gamma$ -Energiebestimmung nach BOTHE zu versuchen, so dass diese Kontrollmöglichkeit ausfällt.

Zum Schluss seien die Resultate in Tabelle 3 zusammengestellt. Die Grundlagen der Massenberechnung sind dem Isotopenbericht 1942<sup>39)</sup> entnommen.

Tabelle 3.

	$S^{37}$	$P^{34}$
Halbwertszeit . .	$5,04 \pm 0,02$ min	$12,40 \pm 0,12$ sec
Grenzenergie $\beta_1$ .	$4,3 \pm 0,3$ MeV	$5,1 \pm 0,2$ MeV
$\beta_2$ .	$1,6 \pm 0,1$ MeV	$3,2 \pm 0,2$ MeV
$\beta_1:\beta_2$ . . . . .	10:90	75:25
$\gamma$ -Strahlung . . .	$2,7 \pm 0,2$ MeV	(1,9 MeV)
Masse . . . . .	$36,98231 \pm 30$	$33,98257 \pm 30$

Mit Ausnahme des wahrscheinlich sehr langlebigen  $Cl^{36\ 32)}$  sind nun alle Isotope nachgewiesen, welche durch die bekannten Neutronenprozesse ( $n, \gamma$ ), ( $n, 2n$ ), ( $n, p$ ) und ( $n, \alpha$ ) aus Chlor gebildet werden können.

Unserem verehrten Lehrer, Prof. Dr. P. SCHERRER, möchten wir für sein stetes, förderndes Interesse an dieser Arbeit den besten Dank aussprechen.

Zürich, Physikalisches Institut der E.T.H.

#### Literaturverzeichnis.

- 1) IMHOF, Micafil-Nachrichten, Juli 1939.
- 2) IMHOF, HPA **12**, 285 (1939).
- 3) OLIPHANT und RUTHERFORD, Proc. Roy. Soc., A **141**, 259 (1933).
- 4) HUBER, LIENHARD und WÄFFLER, HPA **16**, 33 (1943).
- 5) HALLER, Wiss. Veröff. Siemens **17**, 115 (1938).
- 6) SCHÜTZE, Wiss. Veröff. Siemens **17**, 135 (1938).

- <sup>7)</sup> RABUS, Arch. f. Elektrotechn. **32**, 389 (1938).
  - <sup>8)</sup> KIRKPATRICK und BECKERLEY, Rev. Sci. Inst. **7**, 24 (1936).
  - <sup>9)</sup> BRÜCHE und SCHERZER, Geometrische Elektronenoptik, Springer 1934.
  - <sup>10)</sup> VAN ATTA, NORTHRUP und VAN DE GRAAF, Rev. Sci. Inst. **12**, 534 (1941).
  - <sup>11)</sup> WÄFFLER, HPA **12**, 288 (1939).
  - <sup>12)</sup> VON ARDENNE, Elektronen-Ü bermikroskopie, Springer 1940, S. 115.
  - <sup>13)</sup> BAUMGARTNER et al., HPA **15**, 332 (1942).
  - <sup>14)</sup> PENNING, Physica **4**, 71 (1937).
  - <sup>15)</sup> AEBERSOLD, J. app. Phys. **12**, 345 (1941).
  - <sup>16)</sup> ALAOGLU und SMITH, Phys. Rev. **53**, 832 (1938).
  - <sup>17)</sup> VAN DER VELDEN und ENDT, Physica **9**, 641 (1942).
  - <sup>18)</sup> LIFSCHUTZ und LAWSON, Rev. Sci. Inst. **9**, 83 (1938).
  - <sup>19)</sup> LIFSCHUTZ, Rev. Sci. Inst. **10**, 21 (1939).
  - <sup>20)</sup> STEVER, Phys. Rev. **61**, 38 (1942).
  - <sup>21)</sup> HULL, Rev. Sci. Inst. **11**, 404 (1940).
  - <sup>22)</sup> FEATHER, Phys. Rev. **35**, 1559 (1930).
  - <sup>23)</sup> FEATHER, Proc. Cambridge Phil. Soc. **34**, 599 (1938).
  - <sup>24)</sup> WU, Phys. Rev. **59**, 481 (1941).
  - <sup>25)</sup> BORN und SEELMANN, Naturwiss. **31**, 201 (1943).
  - <sup>26)</sup> WATASE und ITOH, Proc. Phys.-math. Soc. Japan (3) **21**, 626 (1939).
  - <sup>27)</sup> DUNWORTH, Rev. Sci. Inst. **11**, 167 (1940).
  - <sup>28)</sup> MAIER-LEIBNITZ, Physik. Zeitschr. **43**, 333 (1942).
  - <sup>29)</sup> BOTHE und KOLHÖRSTER, Naturwiss. **17**, 271 (1929).
  - <sup>30)</sup> HUBER, LIENHARD und WÄFFLER, HPA **15**, 314 (1942).
  - <sup>31)</sup> O'NEAL, Phys. Rev. **59**, 109 (1941).
  - <sup>32)</sup> KAMEN, Phys. Rev. **60**, 537 (1941).
  - <sup>33)</sup> BECKER und BOTHE, Zeitschr. f. Phys. **76**, 421 (1932).
  - <sup>34)</sup> CURRAN, DEE und PETRZILKA, Proc. Roy. Soc. A **169**, 269 (1938).
  - <sup>35)</sup> BENNET, BONNER und WATT, Phys. Rev. **59**, 794 (1941).
  - <sup>36)</sup> CORK und MIDDLETON, Phys. Rev. **58**, 474 (1940).
  - <sup>37)</sup> PEIERLS, Proc. Roy. Soc. A **149**, 469 (1935).
  - <sup>38)</sup> NORLING, Ark. Mat. Astron. Fysik **27**, Nr. 27 (1941).
  - <sup>39)</sup> FLÜGGE und MATTAUCH, Physik. Zeitschr. **44**, 181 (1943).
-

# Die elektrische Leitfähigkeit des Siliziumkarbids

von G. Busch.

(1. IV. 1946.)

*Zusammenfassung.* Die elektrische Leitfähigkeit wurde an 20 einkristallinen, aus grossen SiC-Kristallen geschliffenen, prismatischen Stäbchen mit Hilfe einer Sondenmethode gemessen. Zur Prüfung des Ohmschen Gesetzes diente eine empfindliche Nullmethode unter Verwendung eines Differentialgalvanometers. Für Stromdichten zwischen  $10^{-5}$  und ca.  $1 \text{ A cm}^{-2}$  ergibt sich die exakte Gültigkeit des Ohmschen Gesetzes. Volumengleichrichter-Effekte wurden nicht beobachtet.

Der Temperaturgang der Leitfähigkeit wurde zwischen 80 und  $1400^\circ \text{ K}$  verfolgt. Zur Messung der Sondenspannung diente ein Röhrenvoltmeter in spezieller Anordnung. Die Leitfähigkeit und ihre Temperaturabhängigkeit sind an ein und demselben Kristallstäbchen streng reproduzierbar, variieren jedoch bei verschiedenen Kristallen je nach der Färbung ausserordentlich stark. Bei Zimmertemperatur ergeben sich Leitfähigkeiten zwischen ca.  $5 \cdot 10^{-13}$  bis  $5 \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ . Bei hohen Temperaturen durchläuft die Leitfähigkeit  $\sigma$  ein Maximum, während bei hinreichend tiefen Temperaturen die Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit durch ein Gesetz von der Form

$$\sigma(T) = A_1 \cdot e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}} + A_2 \cdot e^{-\frac{\varepsilon_2}{2kT}}$$

wiedergegeben werden kann.

Zwischen der Mengenkonstanten  $A$  und der Aktivierungs-Energie  $\varepsilon$ , die aus den Steilheiten der  $\log \sigma$  in Funktion von  $1/T$  darstellenden Kurven direkt gewonnen werden, besteht der Zusammenhang

$$\log A = \alpha + \beta \cdot \varepsilon.$$

## I. Übersicht der bisherigen Ergebnisse.

Die Versuche, die elektrische Leitfähigkeit des Siliziumkarbids zu messen, sind recht zahlreich. Ihre Ergebnisse sind aber so lückenhaft und oft widersprechend, dass der Anschein erweckt worden ist, die Leitfähigkeit des SiC werde rein zufällig und in unkontrollierbarer Weise von irgendwelchen Verunreinigungen der Substanz verursacht. Tatsächlich liegen beim SiC sehr verwickelte Verhältnisse vor, die heute noch recht wenig aufgeklärt sind.

Das beim technischen Herstellungsprozess entstehende SiC fällt teilweise in grossen, metallisch glänzenden Kristallen an, deren Färbung vom Blassgelb über Grün und Blau bis zum tiefen Schwarz variieren kann. Zweifellos werden die verschiedenen Farbtöne des im reinen, stöchiometrisch zusammengesetzten Zustand



farblosen SiC durch Unterschiede in der Art und der Konzentration von Gitterbaufehlern und Einschlüssen von Fremdatomen verursacht. Es ist daher zum vornherein zu erwarten, dass die elektrische Leitfähigkeit des SiC, welches zu den Halbleitern zu zählen ist, indirekt von der Farbe abhängen wird. Deutliche Anhaltspunkte dafür haben sich bereits in einer früheren Arbeit ergeben<sup>1)</sup>.

Einige ältere Leitfähigkeitsmessungen wurden durch die Tatsache gefälscht, dass jeder SiC-Kristall sowie auch seine Bruchstücke, eine oberflächliche Fremdschicht von kleiner elektrischer Leitfähigkeit besitzt. Obwohl über die genaue Beschaffenheit dieser Schichten infolge ihrer geringen,  $10^{-7}$  cm unterschreitenden Dicke, noch nichts bekannt ist, muss nach den Arbeiten von CLAUS<sup>2)</sup>, GERMER<sup>3)</sup>, FINCH und WILMAN<sup>4)</sup>, HEINE und SCHERRER<sup>5)</sup>, BRAUN und BUSCH<sup>6)</sup> ihre Existenz als gesichert angesehen werden. Nun rufen Fremd- und Sperrschichten im Innern oder an der Oberfläche von Kristallen stets Abweichungen vom Ohmschen Gesetz, event. auch Gleichrichter-Effekte hervor. Es ist daher verständlich, dass von allen Autoren<sup>7)</sup>, welche bei ihren Messungen die Existenz der Fremdschichten übersahen, Ungültigkeit des Ohmschen Gesetzes, Oberflächen- und Volumengleichrichter-Effekte beobachtet wurden und dem SiC als charakteristische Eigenschaften zugeschrieben worden sind.

Um dem störenden Einfluss der Fremdschichten zu entgehen, sind bis jetzt drei verschiedene Wege beschritten worden.

Eine erste Methode, welche grundsätzlich richtige Werte der elektrischen Leitfähigkeit des SiC zu liefern imstande ist, wurde von KURTSCHATOW, KOSTINA und RUSINOW<sup>8)</sup> angewandt. Sie besteht darin, dass in den Körnern von gepulvertem SiC durch ein hochfrequentes Magnetfeld Wirbelströme erzeugt werden. Aus der dabei hervorgerufenen Temperaturerhöhung kann bei bekannter spezifischer Wärme und bekannter Korngrösse auf die Leitfähigkeit der Substanz geschlossen werden. Die bei Zimmertemperatur ausgeführten Messungen führten zu einem Leitfähigkeitswert von ca.  $1 \text{ Ohm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ . Das Verfahren hat allerdings den Nachteil,

<sup>1)</sup> A. BRAUN und G. BUSCH, H. P. A. **15**, 571 (1942).

<sup>2)</sup> B. CLAUS, Ann. d. Phys. **14**, 644 (1932).

<sup>3)</sup> L. H. GERMER, Phys. Rev. **49**, 163 (1936).

<sup>4)</sup> G. J. FINCH und H. WILMAN, Trans. Faraday Soc. **33**, 337 (1937).

<sup>5)</sup> H.-G. HEINE und P. SCHERRER, H. P. A. **13**, 489 (1940).

<sup>6)</sup> A. BRAUN und G. BUSCH, loc. cit.

<sup>7)</sup> H. OSTERBERG, Phys. Rev. **50**, 1187 (1936). — J. K. BOSE und S. R. KASTGIR, Z. f. Phys. **100**, 80 (1938).

<sup>8)</sup> J. V. KURTSCHATOW, T. Z. KOSTINA und W. L. RUSINOW, Phys. Zs. Sov. Union **7**, 129 (1935).

dass für die Berechnung der Leitfähigkeit die Gültigkeit des Ohmschen Gesetzes a priori vorausgesetzt werden muss. In ähnlicher Weise, durch Messung der Dämpfungsverluste eines hochfrequenten Schwingungskreises, in dessen Kondensator verschiedene Halbleiter eingeführt wurden, versuchten VOELKL<sup>1)</sup> und GUILLERY<sup>2)</sup> zum Ziele zu kommen. Während in der Mehrzahl der Fälle die in der angegebenen Weise erhaltenen Leitfähigkeiten mit Stromspannungsmessungen an polykristallinem Material übereinstimmen, ergeben sich u. a. beim SiC rund 100mal grössere, aber zweifellos richtigere Werte, als durch Messungen an Pulvern oder gepressten Pastillen.

Eine zweite Methode wurde von HENNINGER<sup>3)</sup> angegeben, wobei Einkristalle von SiC zur Untersuchung gelangten. Es gelang HENNINGER durch Anwendung kurzzeitiger Hochspannungsschüsse die Übergangswiderstände zwischen SiC-Kristallen und den als Stromzuführungen dienenden metallischen Elektroden so herabzusetzen, dass weder eine Gleichrichtung noch eine Spannungsabhängigkeit der Leitfähigkeit zu beobachten war. Trotzdem scheint uns dieses Verfahren bedenklich, denn die ermittelten Leitfähigkeiten von ca.  $0,5 \text{ Ohm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ , welche an gut durchsichtigen Kristallen von blassgrüner bis gelbgrüner Farbe bei Zimmertemperatur gefunden wurden, sind reichlich hoch. Besonders auffallend ist ausserdem der sehr kleine Temperaturkoeffizient von nur  $-0,7\%$  pro Grad. Leider entzieht es sich unserer Kenntnis, wie weit bei diesen Versuchen darauf geachtet worden ist, dass beim Anlegen der hohen Spannungen nicht feine Durchschlagskanäle mit sehr hohen Leitfähigkeiten erzeugt worden sind. Jedenfalls stellte sich bei einer Wiederholung der HENNINGERSchen Versuche heraus, dass die an sich sehr harten SiC-Kristalle nach dem Durchgang der Stromschüsse leicht in mehrere Stücke zerbröckelten, welche untereinander grössenordnungsmässig verschiedene „Leitfähigkeiten“ zeigten.

Die zuverlässigste Methode, elektrische Leitfähigkeiten an Einkristallen zu ermitteln, besteht wohl darin, mittels *Sonden* die Spannung elektrometrisch zu messen, welche sich beim Durchfluss eines bekannten Stromes einstellt. Nach dieser Methode sind bereits von SEEMANN<sup>4)</sup>, sowie von SEARS und BECKER<sup>5)</sup> Versuche unternommen worden. Sie erstreckten sich jedoch auf wenig umfang-

<sup>1)</sup> A. VÖLKL, Ann. d. Phys. **14**, 193 (1932).

<sup>2)</sup> P. GUILLERY, Ann. d. Phys. **14**, 216 (1932).

<sup>3)</sup> F. P. HENNINGER, Ann. d. Phys. **28**, 245 (1937).

<sup>4)</sup> H. J. SEEMANN, Phys. Zs. **30**, 143 (1929).

<sup>5)</sup> R. W. SEARS und J. A. BECKER, Phys. Rev. **40**, 1055 (1932).

reiches Material und enthalten keine Angaben über die Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit. Überdies besteht zwischen den beiden Arbeiten insofern ein Widerspruch, als SEEMANN eine Spannungsabhängigkeit findet, SEARS und BECKER dagegen nicht.

Zufolge der dargelegten Umstände schien es angebracht, die elektrische Leitfähigkeit an einer grösseren Zahl von SiC-Einkristallen auf ihre Spannungs- und Temperaturabhängigkeit zu prüfen, was zum Ergebnis der vorliegenden Arbeit führte.

## II. Messmethode und Apparatur.

### 1. Untersuchungsmaterial und Versuchsbedingungen.

Zur Untersuchung gelangten ausschliesslich genau prismatische Stäbchen von ca.  $1\text{ mm}^2$  Querschnitt und 8—12 mm Länge, welche aus grossen homogen gewachsenen SiC-Einkristallen herausgeschliffen wurden<sup>1)</sup>. Die Längsachse der Stäbchen war parallel zu einer Kante der hauptsächlich ausgebildeten hexagonalen Basisfläche (0001), d. h. senkrecht zur kristallographischen *c*- und einer der *a*-Achsen orientiert.

An den Enden der Stäbchen wurden die Stromzuführungen angebracht, welche entweder aus mehrmals um das Stäbchen gewickeltem Platindraht oder einer nach einem einfachen Verfahren hergestellten Silberschicht bestanden. Besonders gute Kontakte mit niedrigen Übergangswiderständen lieferte die zweite Elektrodenart, welche in folgender Weise hergestellt wurde. Die mit Metall zu bedeckenden Stellen wurden mit einer wässrigen Lösung von Silberfluorid AgF bestrichen und dann vorsichtig erwärmt. AgF schmilzt bei  $435^{\circ}\text{C}$  und zersetzt sich bei wenig höherer Temperatur unter Abscheidung einer festhaftenden, massiven Silberschicht, welche nach dem Erkalten bequem weiterbearbeitet werden kann. Die mit Elektroden versehenen Stäbchen konnten an einem ca. 20 cm langen Halter aus Quarzröhrchen befestigt werden. Als Sonden dienten für die orientierenden Messungen bei Zimmertemperatur Stahl- bzw. Wolframspitzen; für die Versuche bei hohen Temperaturen wurden Schlingen aus  $\frac{5}{100}$  mm dickem Platindraht um die Stäbchen gelegt, welche durch kleine Zugfedern stets straff gespannt waren. Der ganze Halter konnte

<sup>1)</sup> Als Ausgangsmaterial dienten ca. 200 kg kristalline SiC-Drusen, die uns von den Chemischen Fabriken und Elektrizitätswerken LONZA, Basel, bzw. den Gotthardwerken in Bodio in freundlicher Weise zur Verfügung gestellt wurden. — Das Schleifen der Stäbchen besorgten die Diamant- und Hartmetall-Werke in Dulliken.



entweder in einen elektrischen Röhrenofen oder einen Gaskryostataten eingeführt werden, welcher ähnlich einem in einer früheren Arbeit<sup>1)</sup> beschriebenen Modell konstruiert war. Bei hohen Temperaturen wurde getrockneter, und von Sauerstoff befreiter Bombenstickstoff als Schutzgas verwendet; bei tiefen Temperaturen befand sich der Kristall in einer Wasserstoff-Atmosphäre. Die Temperaturen wurden oberhalb Zimmertemperatur in üblicher Weise mit einem Chromel-Alumel-Thermoelement, unterhalb Zimmertemperatur mit einem Kupfer-Konstantan-Element in Kompensationsschaltung gemessen. Das ganze Temperaturgebiet zwischen dem Siedepunkt des flüssigen Stickstoffs und 1200° C konnte kontinuierlich überstrichen werden. Alle Messungen wurden stets bei stationärer Temperatur und unter Lichtabschluss vorgenommen, um Fälschungen der Messresultate durch Temperaturfehler, bzw. zusätzliche lichtelektrische Leitung zu verhindern.

## 2. Messungen mit dem Röhrenvoltmeter.

Ist  $q$  der Querschnitt des Kristallstäbchens und  $a$  der Abstand der Sonden, so ergibt sich aus der das Stäbchen durchfliessenden Stromstärke  $I$  und der an den Sonden gemessenen Spannung  $V$  die Leitfähigkeit nach der einfachen Formel

$$\sigma = \frac{a}{q} \cdot \frac{I}{V}.$$

Selbstverständlich erhält man nur dann richtige Werte für  $\sigma$ , wenn die Leitfähigkeit im ganzen Kristallstäbchen homogen ist und die Spannung  $V$  praktisch stromlos gemessen wird. Auf die Erfüllung der zweiten Bedingung muss deshalb besonders geachtet werden, da die Übergangswiderstände zwischen den Sonden und dem Kristallstäbchen erstens spannungsabhängig sind und zweitens bei schwach leitenden Kristallen und bei tiefen Temperaturen praktisch unmessbar hoch werden. Die Übergangswiderstände konnten jedoch in den meisten Fällen durch ein einfaches Mittel so stark verringert werden, dass einwandfreie Messungen möglich waren. Zu diesem Zwecke wurde über die Sonden eine Kapazität von 1  $\mu$ F, die auf einige Hundert Volt Spannung geladen worden war, entladen. Wurden die Fremdschichten auf den Kristallen einmal auf diese Weise durchschlagen, so behielten die Übergangswiderstände ihre niedrigen Werte tagelang bei. Trotz dieser Massnahme blieb die ausserordentlich starke Zunahme der Sondenwiderstände

---

<sup>1)</sup> G. BUSCH und E. GANZ, H. P. A. **15**, 501 (1942).



mit sinkender Temperatur bestehen, wodurch den Messungen in gewissen Fällen prinzipielle Grenzen gesetzt wurden. Die Forderung nach statischer Messung der Sondenspannung  $V$  blieb daher bestehen. Durch die Verwendung eines Röhrenvoltmeters, dessen Anordnung aus Fig. 1 ersichtlich ist, wurde ihr Rechnung getragen.

Das Röhrenvoltmeter  $RV$  enthält eine AEG-Elektrometer-Röhre  $T 113$ , welche mit freiem Gitter arbeitet. Die Heizspannung betrug 2 Volt und die Anodenspannung 8 Volt. Der Anodenstrom wurde kompensiert und die Stromänderungen mit einem Galvanometer von  $5 \cdot 10^{-9}$  A/mm Empfindlichkeit nachgewiesen. Sämtliche Spannungen wurden Akkumulatoren entnommen, was völlig

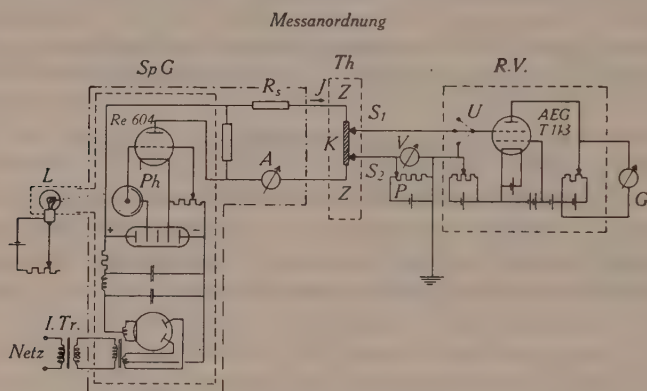


Fig. 1.

stabile Verhältnisse gewährleistete. Bei einer maximalen Spannungsempfindlichkeit von  $45 \cdot 10^{-5}$  V/mm zeigte das Galvanometer nur einen ganz unerheblichen Gang. Das Röhrenvoltmeter arbeitete bei Sondenwiderständen bis zu  $10^9$  Ohm noch zuverlässig; bei höheren Widerständen machte sich der Gitterstrom der Röhre störend bemerkbar.

Die Sonde  $S_1$  stand über den hochisolierten Umschalter  $U$  mit dem Gitter der Röhre in Verbindung. Die Sonde  $S_2$  wurde über das Potentiometer  $P$  an die Kathode gelegt und geerdet. Mit Hilfe dieses Potentiometers konnte die an den Sonden auftretende Spannung  $V$  kompensiert und an einem Präzisionsvoltmeter mit mehreren Messbereichen direkt abgelesen werden. Das Röhrenvoltmeter arbeitete also als Nullinstrument.

Aus der Tatsache, dass die Sonde  $S_2$  geerdet ist und die Übergangswiderstände zwischen den Sonden und dem Kristall  $K$  in unkontrollierbarer Weise variieren können, ergibt sich die strikte

Forderung, dass Nebenschlüsse jeder Art zwischen den Sonden  $S_1$  und  $S_2$  und den an den Enden des Kristallstäbchens liegenden Stromzuführungen  $Z$  streng vermieden werden. Das Spannungsgerät  $Sp-G$ , welches den durch das Stäbchen fließenden Strom  $I$  liefert, muss also gegen Erde hoch isoliert sein. Diese Bedingung sowie die zweite, dass der Strom bequem reguliert und gemessen werden kann, wurden in folgender Weise erfüllt.

Als Spannungsquelle wirkte ein stabilisiertes Gleichrichtergerät in üblicher Schaltung. Die Primärspannung wurde vom Lichtnetz über einen speziell konstruierten Isolier-Transformator  $I-Tr$  zugeführt. Die Stärke des durch den Kristall fließenden Stromes  $I$  wurde mit Hilfe der Triode RE 604 eingestellt, in deren Gitterkreis die Photozelle  $Ph$  liegt. Durch die vom Spannungsgerät völlig abgetrennte 2-V-Glühlampe  $L$ , deren Helligkeit bequem reguliert werden konnte, wurde die Photozelle mehr oder weniger belichtet und dadurch der Strom  $I$  gesteuert. Das ganze Gerät befindet sich zusammen mit einem Mikro-, bzw. Milliampere-meter  $A$  in einem abgeschirmten Kasten, der durch Paraffinstützen gegen Erde isoliert ist.

Um die Zuverlässigkeit der Sondenmethode sowie der ganzen Messanordnung zu prüfen, wurden an einer Reihe von SiC-Stäbchen Leitfähigkeiten bei konstanter Temperatur, meist Zimmertemperatur oder  $0^{\circ}\text{C}$ , gemessen.

Zunächst wurde geprüft, ob die durch Messung und Rechnung gefundenen Leitfähigkeitswerte bei konstantem Sondenabstand und unveränderter Lage der Sonden von ihren Übergangswiderständen abhängen. Als Sonden kamen Stahl- bzw. Wolframspitzen zur Anwendung. Oberhalb  $10^9$  Ohm war eine Messung aus den oben erwähnten Gründen nicht durchführbar. Wurden jedoch die Übergangswiderstände durch immer stärkeres Durchschlagen der Fremdschichten reduziert, so ergibt sich das in Fig. 2 an einem Beispiel dargestellte Verhalten. Mit abnehmendem Sondenwiderstand zeigt sich demnach zunächst eine schwache Abnahme der Sondenspannung bei konstantem Strom, d. h. scheinbar eine Zunahme der Leitfähigkeit. Von  $10^7$  Ohm an abwärts ist jedoch der Einfluss vernachlässigbar klein.

### 3. Homogenität der Kristalle und innere Sperrschichten.

Neue Versuchsbedingungen wurden dadurch geschaffen, dass man die Sonden bei konstant gehaltenem Abstand in kleinen Schritten längs einer Prismenfläche des SiC-Stäbchens verschob, und in jeder neuen Lage nach Durchschlagen der Fremdschichten

die Leitfähigkeit bestimmte. Endlich wurden die Sonden in verschiedenen Abständen und Lagen auf allen vier Prismenflächen sowie gleichzeitig auf zwei verschiedenen Flächen aufgesetzt. In allen Fällen ergaben sich innerhalb etwa 5% reproduzierbare Leitfähigkeiten. Daraus folgt erstens, dass die Sondenmethode ohne weiteres zur Anwendung kommen kann, wenn keine höheren Genauigkeitsansprüche gestellt werden. Zweitens zeigt sich, dass die untersuchten Kristallstäbchen, mit Ausnahme von Fällen, wo schon von aussen Ungleichmässigkeiten in der Färbung sichtbar sind, praktisch als homogen betrachtet werden können.

Damit ist auch gleichzeitig die Frage beantwortet, ob im Innern der SiC-Kristalle Sperrschichten vorhanden sind, welche für den von anderen Autoren gelegentlich beobachteten Volumen-

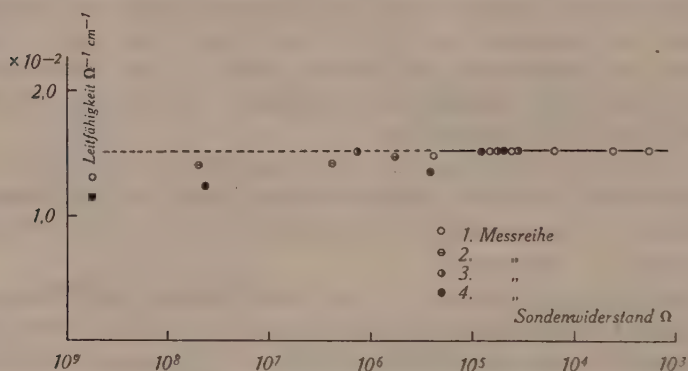


Fig. 2.

gleichrichter-Effekt verantwortlich gemacht werden könnten. Nach unseren vorläufigen Messungen existiert ein Volumengleichrichter-Effekt nicht; das Ohmsche Gesetz ist gültig, jedenfalls zunächst in einem kleinen Variationsbereich der Stromdichte. Damit sind auch innere Sperrschichten mit grösster Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen.

Eine weitere Beobachtung spricht gegen ihre Existenz. Die Resultate der HENNINGERSCHEN<sup>1)</sup> Versuche könnten allenfalls in der Weise gedeutet werden, dass beim Durchgang der starken Stromstösse die hypothetischen inneren Sperrschichten durchschlagen und dadurch die Leitfähigkeit der Kristalle erhöht worden ist. Dahinzielende eigene Versuche verliefen jedoch völlig negativ.

<sup>1)</sup> F. P. HENNINGER, loc. cit.

Verschiedenen Stäbchen wurden in der Längsrichtung so hohe Spannungsschüsse durch Entladen einer Kapazität verabfolgt, bis an den unter Petrol gehaltenen Stäbchen Überschlüge auftraten. Die Leitfähigkeit veränderte sich jedoch trotz dieser Behandlung in keiner Weise.

#### 4. Gültigkeit des Ohmschen Gesetzes.

Nachdem sich die Gültigkeit des Ohmschen Gesetzes mindestens innerhalb eines kleinen Stromdichtebereiches und mit einer Fehlerschranke von ca. 5% erwiesen hatte, war der Nachweis seiner Gültigkeit über einen grossen Strombereich und mit der grössten möglichen Genauigkeit sehr zu wünschen. Mit der

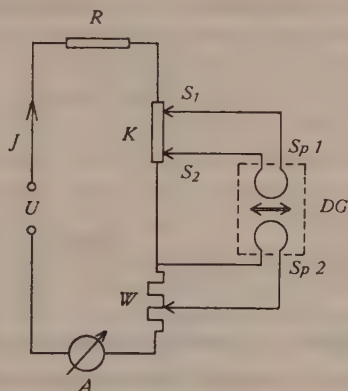


Fig. 3.

Schaltung zur Prüfung des Ohmschen Gesetzes.

in II. 2. beschriebenen Apparatur war dies aus verschiedenen Gründen nicht möglich, so dass eine andere Lösung gesucht werden musste, die sich durch die Anwendung eines Differentialgalvanometers ergab. Fig. 3 stellt das Prinzip der Schaltung dar.

Die veränderliche Spannungsquelle  $U$  lieferte den durch den Kristall fliessenden Strom  $I$ . Der Kristall war wiederum mit zwei Sonden  $S_1$  und  $S_2$  versehen, deren Übergangswiderstände auf ca. 100 Ohm reduziert werden konnten. Die Sondenspannung wirkte auf die Spule  $Sp 1$  des Differentialgalvanometers von 7000 Ohm Widerstand. Am veränderlichen Widerstand  $W$  liess sich eine zum Strom  $I$  proportionale Spannung abgreifen, welche an die zweite Galvanometerspule  $Sp 2$  gelegt wurde. Die Spulen  $Sp 1$  und  $Sp 2$  waren voneinander getrennt und hochisoliert und wurden so gepolt, dass sich ihre Wirkungen auf die Galvanometernadel bei geeigneter



Einstellung des Widerstandes  $W$  genau aufhoben. Mit Hilfe dieser Nullmethode war der Nachweis des Ohmschen Gesetzes auch über einen grossen Strombereich sehr rasch erbracht. Das Ergebnis dieser Messungen ist an einem Beispiel in Fig. 4 dargestellt. Zum Vergleich sind in dieser Figur noch die scheinbaren Leitfähigkeitswerte eingetragen, welche sich durch Messung von Stromstärke und Spannung an den Stromzuführungen, d. h. unter dem Einfluss der Fremdschichten ergeben. Es zeigt sich, dass das Ohmsche Gesetz in einem 5 Zehnerpotenzen umfassenden Bereich der Stromdichte innerhalb der in der Figur angegebenen Fehlergrenzen *exakte* Gültigkeit besitzt. Ein Einfluss der *Stromrichtung* war nicht fest-

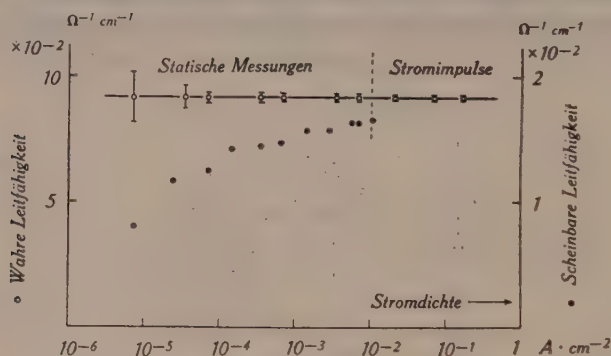


Fig. 4.

Gültigkeit der OHMSchen Gesetzes im SiC.

zustellen, d. h. SiC zeigt *keinen* Volumengleichrichter-Effekt. Dieses Ergebnis ist nicht nur an sich von Interesse und dürfte zur Klärung einer alten Streitfrage beitragen, sondern ist auch aus messtechnischen Gründen wichtig. Es ergibt sich offensichtlich so die Möglichkeit, die Leitfähigkeit eines SiC-Kristalls aus zwei beliebigen zusammengehörigen Strom- und Spannungswerten ohne weitere Einschränkungen zu berechnen, wovon bei den folgenden Messungen der Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit Gebrauch gemacht wird.

Bei extrem hohen Stromdichten, bzw. Feldstärken wird sich zwar voraussichtlich auch beim SiC eine Zunahme der elektrischen Leitfähigkeit im Sinne des POOLEschen oder FRENKELschen Gesetzes<sup>1)</sup> bemerkbar machen, wie dies an anderen Halbleitern besonders von A. V. und A. F. JOFFÉ<sup>2)</sup> nachgewiesen worden ist. Messungen dieser Art sind jedoch bisher am SiC noch nicht zur Durchführung gelangt.

<sup>1)</sup> J. FRENKEL, Phys. Rev. **54**, 647 (1938).

<sup>2)</sup> A. V. und A. F. JOFFÉ, C. R. Moskau **16**, 77 (1937); J. exp. theor. Phys. **9**, 1451 (1939); J. Phys. USSR **2**, 283 (1940).

### III. Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit.

#### 1. Messergebnisse.

Die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leitfähigkeit  $\sigma$  des SiC ist an 20 einkristallinen Stäbchen in der unter II. 2. beschriebenen Weise untersucht worden. Tabelle 1 gibt eine Übersicht der Daten des Untersuchungsmaterials. Alle untersuchten Kristalle waren völlig frei von makroskopisch sichtbaren Defekten, wie Lunker, Risse u. dgl.

Der Abstand der Sonden betrug je nach der Länge des Stäbchens 3—10 mm und liess sich mit Hilfe eines einfachen Komparators auf  $\frac{1}{10}$  mm genau messen. Die Lage der Sonden blieb während der ganzen Messung bei tiefen und hohen Temperaturen unverändert.

Während sich die Messung der schwarzen Modifikation des SiC infolge ihrer grossen Leitfähigkeit bis zur Temperatur des flüssigen Stickstoffs ohne Schwierigkeiten durchführen liess, mussten die Messungen an den schwächer leitenden gelben und grünen Kristallen bei weniger tiefen Temperaturen abgebrochen werden, da in diesen Fällen der Sondenwiderstand über  $10^9$  Ohm anstieg. Oberhalb Zimmertemperatur traten mit Ausnahme der Kristalle 10 und 18, die infolge ihrer hochisolierenden Fremdschichten erst von ca. 350, bzw. 250° C an gemessen werden konnten, zunächst keine Störungen auf. Zwischen 750 und 900° C dagegen trat ein merkwürdiger Effekt in Erscheinung, der mit einer Umwandlung oder Umlagerung der Fremdschichten an der Oberfläche der SiC-Kristalle im Zusammenhang stehen muss. In diesem Temperaturintervall schwankte der Sondenwiderstand und damit der Nullpunkt des Röhrenvoltmeters oft in solcher Weise, dass eine Messung nur mit Mühe, oft aber überhaupt nicht durchzuführen war. Alle Versuche, die Sondenwiderstände mit Hilfe von elektrischen Durchschlägen zu stabilisieren, blieben erfolglos. Dagegen zeigte sich unerwarteterweise, dass sich von 900° C an aufwärts wieder völlig stabile Verhältnisse einstellten, auch ohne dass die Sondenkontakte neu durchschlagen zu werden brauchten. Bei sinkender Temperatur trat der Effekt regelmässig wieder auf und verschwand unterhalb 750° C restlos.

Die Temperatur wurde in der Regel bis 1100° C getrieben, nachdem sich zeigte, dass die in einer Stickstoff-Atmosphäre gehaltenen SiC-Kristalle bis zu diesen Temperaturen keine irreversiblen Veränderungen erlitten und sich die Leitfähigkeiten bei steigender und sinkender Temperatur streng reproduzierten.

Tabelle 1.

Zusammenstellung der Versuchsergebnisse am SiC.

Krist. Nr.	Quer- schnitt mm <sup>2</sup>	Länge mm	Farbe	$\sigma_0$ °C $\Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$	$T_{\text{max}}$ ° K	$\sigma_{\text{max}}$ $\Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$	$\varepsilon_{\text{ev}}$		$A_{\Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}}$		Bemerkungen
							$\varepsilon_1$	$\varepsilon_2$	$A_1$	$A_2$	
10	0,90	11,7	schwachgelb, getrübt	$6 \cdot 10^{-13}$ *	> 1300	—	1,57		261		Maximum nicht erreicht
18	0,51	9,2	gelblich	$2 \cdot 10^{-7}$ *	> 1300	—	0,909		38,9		
12b	1,48	9,8	blass gelb-grün	$1 \cdot 10^{-3}$	1100	$2,6 \cdot 10^{-1}$	0,441		12,5		
6	1,42	18,6	blass-grün	$8 \cdot 10^{-2}$	625	$5,5 \cdot 10^{-1}$	0,304		65		Maximum undeutlich
12a	2,91	9,5	"	$1 \cdot 10^{-1}$	—	—	0,215	0,120	6,3	0,4	
12aa	1,90	9,5	"	$1,3 \cdot 10^{-1}$	—	—	0,246	0,185	11,8	1,5	
9	1,04	12,3	"	$2,3 \cdot 10^{-1}$	620	1,34	0,285	0,133	85	0,3	
11	1,34	9,8	"	$5,5 \cdot 10^{-1}$	570	2,55	0,265	0,191	150	10	
5	2,24	17,5	dunkelgrün	$6,2 \cdot 10^{-1}$	565	2,38	0,263	0,147	190	0,6	
13aa	0,49	10,9	"	$8,5 \cdot 10^{-1}$	575	3,65	0,157	0,057	17	0,3	
8a	1,88	18,0	"	3,4	480	7,90	0,198	0,097	250	2,2	
7	2,25	13,7	schwarz, glänzend	$6,2 \cdot 10^{-1}$	1000	17,3	0,270	0,044	160	0,19	
14b	2,73	6,5	"	$6,5 \cdot 10^{-1}$	1020	20,2	0,281	0,038	240	0,18	
14a	1,44	11,3	"	$8,2 \cdot 10^{-1}$	1020	23,0	0,272	0,044	280	0,29	
15	1,62	9,8	"	$8,2 \cdot 10^{-1}$	1000	22,1	0,282	0,042	350	0,22	
16	2,13	9,7	"	1,03	970	19,7	0,248	0,051	180	0,22	
17b	3,47	8,6	"	1,50	950	31,2	0,231	0,050	220	0,65	
17ba	1,49	9,5	"	1,50	950	31,2	0,231	0,050	220	0,65	
17a	2,18	8,6	"	1,80	950	34,4	0,226	0,052	210	0,95	

\* extrapoliert

Ein Teil der Messresultate ist in den Fig. 5 und 6 dargestellt; auf die Wiedergabe sämtlicher Messreihen und Messpunkte wurde verzichtet um die Figuren nicht unübersichtlich zu gestalten. Es muss jedoch darauf hingewiesen werden, dass die Kurven für alle gelb-, bzw. grün-durchscheinenden Kristalle innerhalb des durch die Kurven 10 und 8a begrenzten weiten Bereiches liegen. Für die schwarze Modifikation sind nur vier Kurven eingetragen, da

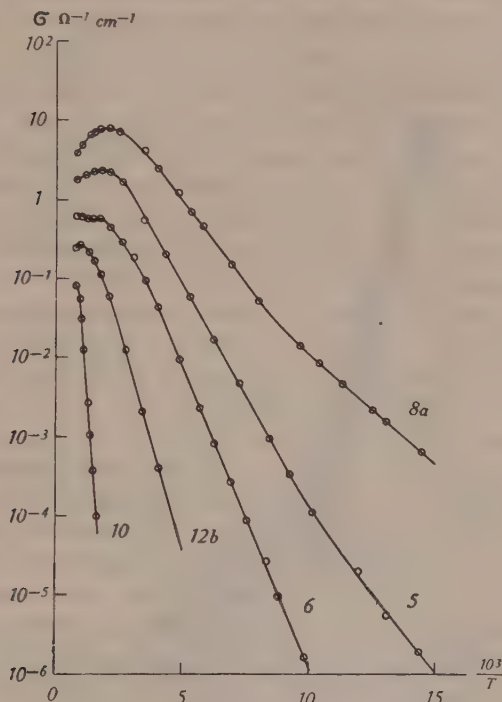


Fig. 5.

Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit des SiC.  
(gelb-grüne Modifikation.)

die Kurven aller übrigen untersuchten schwarzen Kristalle in dieses durch 7 und 17a begrenzte, auffallend enge Gebiet zu liegen kommen. Es scheint, dass im Gegensatz zu der ausserordentlich grossen Variabilität der gelb-grünen Modifikation, die schwarze Modifikation des SiC eine mehr oder weniger definierte Substanz darstellt. Dieser Schluss gründet sich auf den Umstand, dass alle untersuchten Kristallstäbchen aus *verschiedenen* Einkristallen herausgearbeitet worden sind, welche ihrerseits wieder aus *verschiedenen*



Kristalldrüsen stammen. Die Vermutung liegt nahe, dass die schwarze Modifikation eine Art Sättigungszustand darstellt in dem Sinne, dass hier die Konzentration der Störstellen, wahrscheinlich überschüssiger C-Atome, einen Optimalwert erreicht, der mit der Stabilität des SiC-Gitters noch verträglich ist.

Wie aus Fig. 5 und 6 hervorgeht, liefert die graphische Darstellung von  $\log \sigma$  als Funktion der reziproken Temperatur  $T$  eine

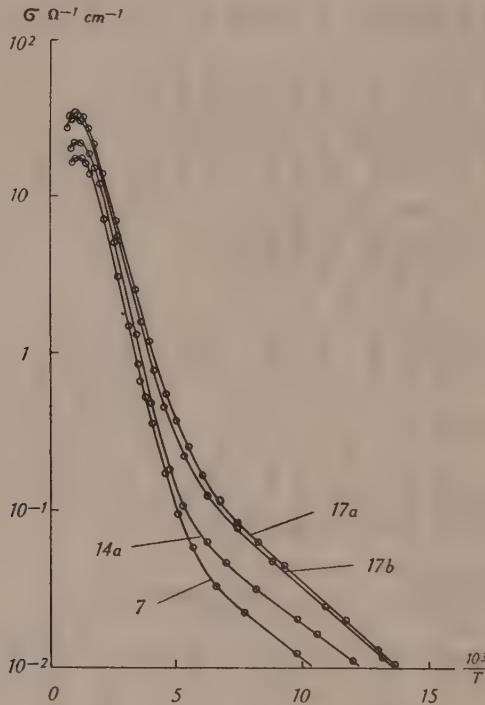


Fig. 6.

Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit des SiC.  
(schwarze Modifikation.)

Schar von Kurven, welche zwei geradlinig verlaufende Stücke von mehr oder weniger stark verschiedenen Neigungen aufweisen. Vor allem aber fällt auf, dass praktisch alle Kurven bei sehr hohen Temperaturen ein *Maximum* durchlaufen. Während die schwarzen Kristalle den Höchstwert ihrer Leitfähigkeit zwischen 950 und 1020° K erreichen, liegt im Falle der gelb-grünen Modifikation das Maximum bei um so höheren Temperaturen, je steiler die Kurven verlaufen. So befindet sich z. B. für Kristall Nr. 10 die Maximum-

temperatur offenbar über  $1400^{\circ}$  K. d. h. ausserhalb des untersuchten Temperaturgebietes, während Kristall Nr. 8a schon bei  $480^{\circ}$  K die maximale Leitfähigkeit besitzt. Die theoretische Deutung dieser Maxima wird im nächsten Abschnitt erörtert.

Charakteristisch sind ferner die oben erwähnten, mehr oder weniger starken Knicke der Leitfähigkeitskurven, die vor allem an den schwarzen, und, obschon wenig ausgeprägt, auch an einigen grünen Kristallen beobachtet worden sind. (Kristalle Nr. 5, 8a, 9, 12a). Hierfür sind die folgenden Erklärungen möglich:

Erstens könnten die Kristallstäbchen inhomogen sein, in dem Sinne, dass Zonen mit verschiedenen Störstellenkonzentrationen und verschiedenen thermischen Aktivierungsenergien, aber an sich gleichem Leitungstypus (Elektronen- oder Löcherleitung) nebeneinander bestehen. Das Stäbchen 12a wies besonders auf diese Interpretation hin, denn es zeigte in der Durchsicht eine deutlich erkennbare Inhomogenität in Form einer dunkel gefärbten Schicht längs der Stäbchenachse. Diese Schicht wurde abgeschliffen und die Leitfähigkeitsmessung wiederholt. Tatsächlich zeigen die beiden Messkurven gegeneinander eine Abweichung, die aber in keinem Temperaturgebiet 15% überschreitet. Insbesondere bleibt der Knick in der Kurve erhalten, und das Verhältnis der Steilheiten der beiden Geradenstücke ergibt in beiden Fällen den Wert  $1,8 \pm 0,05$ . Es scheint daher wenig wahrscheinlich, dass die Ursache in zufälligen Inhomogenitäten zu suchen ist. Zweitens ist die Überlagerung von *Elektronen-* und *Löcherleitung* in Erwägung zu ziehen, was in Anbetracht der Stellung der Elemente C und Si im periodischen System sehr wohl möglich ist. Tatsächlich ist von HOCHBERG und SOMINSKI<sup>1)</sup> durch Messung der Thermospannungen von SiC gegen Metalle festgestellt worden, dass die *grüne* Modifikation *Elektronen-*, die schwarze dagegen *Löcherleitung* zeigt. Dieses Resultat wird durch vorläufige Messungen des Hall-Effektes von LABHART<sup>2)</sup> nicht nur bestätigt, sondern dahingehend erweitert, dass in ein und demselben Kristall beide Leitungstypen gleichzeitig und in energetisch verschiedenen Leitungszonen bestehen können.

Bei hinreichend tiefen Temperaturen, d. h. genügend weit unterhalb des Maximums lässt sich die Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit des SiC formal durch einen Ausdruck der Form

$$\sigma(T) = A_1 \cdot e^{-\frac{\epsilon_1}{2kT}} + A_2 \cdot e^{-\frac{\epsilon_2}{2kT}}$$

<sup>1)</sup> B. M. HOCHBERG und M. J. SOMINSKI, Phys. Zs. Sov. Union **13**, 198 (1938).

<sup>2)</sup> Eine ausführliche Arbeit erscheint demnächst in den H. P. A.

beschreiben, wie dies allgemein üblich ist. In Tabelle 1 sind die Konstanten  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$ , bzw.  $A_1$  und  $A_2$  zusammengestellt, wie sie sich aus den Steilheiten, bzw. aus den Achsenabschnitten der  $\sigma$ -Kurven ergeben. Dabei ist berücksichtigt worden, dass sich die experimentellen Kurven aus zwei Exponentialfunktionen zusammensetzen, die durch eine vorgängige Analyse ermittelt worden sind.

Auch hier zeigt sich, dass die charakteristischen Grössen der gelb-grünen Modifikation innerhalb eines grossen Wertebereiches liegen, während die entsprechenden Grössen für die schwarze Modifikation verhältnismässig wenig streuen. Es gelten etwa folgende Grenzen.

SiC gelb-grün		SiC schwarz	
$6 \cdot 10^{-13} \leq \sigma_0 \leq$	$3,4 \, \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$	$0,62 \leq \sigma_0 \leq$	$1,80 \, \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$
$0,157 \leq \varepsilon_1 \leq$	$1,57 \text{ eV}$	$0,226 \leq \varepsilon_1 \leq$	$0,288 \text{ eV}$
$0,057 \leq \varepsilon_2 \leq$	$0,191 \text{ eV}$	$0,038 \leq \varepsilon_2 \leq$	$0,052 \text{ eV}$
$6,3 \leq A_1 \leq$	$261 \, \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$	$160 \leq A_1 \leq$	$350 \, \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$
$0,3 \leq A_2 \leq$	$10 \, \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$	$0,18 \leq A_2 \leq$	$0,95 \, \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$

Bemerkenswert ist ferner, dass zwischen der *Färbung* der Kristalle und ihrer Leitfähigkeit eine offensichtliche Korrelation besteht: Mit zunehmender Vertiefung des Farbtones des durchgelassenen Lichtes wächst die Leitfähigkeit. Die Kristalle der schwarzen Modifikation zeigen metallischen Glanz; in sehr dünner Schicht sind sie dunkelblau durchscheinend. Die Auffassung, dass SiC ein Störhalbleiter ist, wird durch diese Tatsache qualitativ gestützt.

## 2. Vergleich mit der Theorie.

Nach der Theorie von WILSON<sup>1)</sup> lässt sich die Leitfähigkeit eines *Überschuss-Halbleiters* in der Form

$$\sigma(T) = A(T) \cdot e^{-\frac{\Delta E}{2kT}} \quad (1)$$

mit der *Mengenkonstanten*

$$A(T) = e^2 \left( \frac{f_0}{2m} \right)^{1/4} \cdot \left( \frac{kT}{\pi \hbar^2} \right)^{3/4} \cdot \tau_0 \cdot n_D^{1/2} \quad (2)$$

<sup>1)</sup> A. H. WILSON, Proc. Roy. Soc. **133**, 458 (1931); **134**, 277 (1931); **136**, 487 (1932).

darstellen wobei die folgenden Bezeichnungen gelten:

$\Delta B$  Thermische Aktivierungsenergie

$e, m$  Ladung und Ruhe-Masse des Elektrons

$f_0, \bar{\tau}_0$  Freiheitszahl und mittlere Relaxationszeit der Elektronen im Leitungsband

$n_D$  Zahl der Elektronen-Spenderstellen (Donatoren) pro  $\text{cm}^3$ .

Bei der Diskussion der experimentellen Ergebnisse hat man bisher in den meisten Fällen die schwache Temperaturabhängigkeit von  $A(T)$  neben der Exponentialfunktion ausser acht gelassen, mit Ausnahme jener Arbeiten, in welchen aus Leitfähigkeits- und Halleffekt-Messungen auf die Temperaturabhängigkeit der Elektronenbeweglichkeit bzw. ihrer freien Weglänge geschlossen wird.

Theoretische Überlegungen von WILSON<sup>1)</sup> und BRONSTEIN<sup>2)</sup> liefern für die Temperaturabhängigkeit der mittleren Relaxationszeit in Halbleitern die Beziehung

$$\bar{\tau} \sim T^{-3/2} \quad (3)$$

und zwar für Temperaturen  $T > 1^0 \text{ K}$ , d. h. im ganzen Temperaturgebiet, welches praktisch untersucht wird. Unter Berücksichtigung von (3) hätte man daher für die Mengenkongstante  $A(T)$  eine Temperaturabhängigkeit in der Form

$$A(T) \sim T^{-3/4} \quad (4)$$

zu erwarten. Der Wert  $3/4$  steht aber nun zunächst mit den Experimenten von ENGELHARD<sup>3)</sup> nicht im Einklang, nach welchen bedeutend höhere Exponenten, nämlich ca. 1,5 notwendig wären.

Für einen reinen Überschuss- oder Mangelleiter lässt sich das Leitfähigkeitsgesetz versuchsweise in der allgemeinen Form

$$\sigma(T) = a \cdot T^{-n} \cdot e^{-\frac{\epsilon}{2kT}} \quad (5)$$

schreiben, wo in der Konstanten  $a$  sämtliche temperaturunabhängigen Grössen zusammengefasst sind. Die Grösse  $\Delta B$  aus Gleichung (1) ist in (5) durch  $\epsilon$  ersetzt worden, um anzudeuten, dass es sich dabei um eine *experimentell* ermittelte Grösse handelt, welche mit der theoretischen Aktivierungsenergie  $\Delta B$  im allgemeinen nicht

1) A. H. WILSON, loc. cit.

2) M. BRONSTEIN, Phys. Zs. Sov.-Union **2**, 28 (1932); **3**, 140 (1933).

3) E. ENGELHARD, Ann. d. Phys. **17**, 501 (1933).



identisch ist und vom Modell abhängt, welches man der Auswertung der Messungen zugrunde legt.

Im Falle eines *gemischten* Leiters ist eine zweigliedrige Formel nötig in der Art

$$\sigma(T) = a_1 \cdot T^{-n} \cdot e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}} + a_2 \cdot T^{-n} \cdot e^{-\frac{\varepsilon_2}{2kT}} \quad (6)$$

Es besteht nun die Möglichkeit, aus den experimentell ermittelten Leitfähigkeits-Temperaturkurven die unbekannten Grössen  $a$ ,  $n$  und  $\varepsilon$ , bzw.  $a_1$ ,  $a_2$ ,  $n$ ,  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  aus 3 Kurvenpunkten, bzw. unter Zuhilfenahme graphischer Methoden, zu bestimmen. Diese Auswertung wurde auf Grund unserer Messungen am SiC durchgeführt. Aus den so gewonnenen Werten für  $\varepsilon$  lässt sich zur Probe der Exponent  $n$  aus der Bedingung für die Temperatur  $T_{\max}$  berechnen, bei welcher die Leitfähigkeit  $\sigma$  ihr Maximum durchläuft.

Aus (5) ergibt sich die Maximumsbedingung

$$\frac{\partial \ln \sigma}{\partial \left(\frac{1}{T}\right)} = 0 = n \cdot T_{\max} - \frac{\varepsilon}{2k};$$

d. h.

$$n = \frac{\varepsilon}{2kT_{\max}} \quad (7)$$

und aus (6) unter der praktisch meist erfüllten Voraussetzung, dass der zweite Term in (6) klein gegen den ersten ist:

$$n = \frac{\varepsilon_1}{2kT_{\max}} - \frac{a_2}{a_1} \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2kT_{\max}} \cdot e^{\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2kT_{\max}}} \quad (8)$$

Es zeigt sich jedoch dass der zweite Term in (8) nur eine vernachlässigbare Korrektur darstellt, so dass  $n$  mit genügender Genauigkeit nach (7) berechnet werden kann, wobei  $\varepsilon = \varepsilon_1$  die „Aktivierungsenergie“ bedeutet, welche dem steileren Teil der Leitfähigkeits-Temperaturkurven entspricht.

Für die gelb-grüne Modifikation ergibt sich für  $n$  ein Mittelwert von ca. 3, für die schwarze ca. 2,5, d. h. unsere Ergebnisse würden nach (2) eine Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit von der Form verlangen

$$\bar{\tau} \sim T^{-3,75} \quad \text{bzw.} \quad \bar{\tau} \sim T^{-3,25}.$$

Die hohen negativen Exponenten weichen nun aber ganz beträchtlich vom theoretischen Wert  $3/2$  ab. Auch mit der Theorie von

MOTT und FRÖHLICH<sup>1)</sup> sind diese hohen Werte für  $n$  nicht verträglich. Diese Theorie besitzt für Ionenkristalle bei Temperaturen unterhalb der charakteristischen Temperatur  $\Theta$  Gültigkeit und liefert im wesentlichen für die Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit

$$\bar{\tau} \sim (e^{\Theta/T} - 1) \cdot \left(\frac{T}{\Theta}\right)^{1/2}.$$

Obschon durch die Exponentialfunktion eine starke Temperaturabhängigkeit von  $\sigma$  erzeugt wird, kann insbesondere die Lage des Leitfähigkeitsmaximums nicht erklärt werden.

Es ist allerdings zum vornherein fraglich, ob eine *Theorie für Ionenkristalle* mit Ergebnissen verglichen werden kann, die am SiC gewonnen worden sind. Dem SiC wird ja allgemein *Valenzbindung* zugeschrieben, was andererseits zwar mit der starken Ultrarotabsorption nicht ohne weiteres im Einklang steht. Über die Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit in Valenzkristallen ist leider theoretisch nichts bekannt; es kann lediglich vermutet werden, dass in diesem Falle Verhältnisse vorliegen, die sich dem metallischen Zustand nähern. Eine stärkere Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit ist dadurch aber nicht sofort verständlich.

Im Gegenteil haben Halleffekt-Messungen<sup>2)</sup> an denselben SiC-Einkristallen, deren Leitfähigkeit in der vorliegenden Arbeit untersucht worden ist, gezeigt, dass kein Grund besteht, vom theoretischen  $T^{-3/2}$ -Gesetz für die Relaxationszeit  $\bar{\tau}$  abzugehen. Für den Verlauf der Leitfähigkeit des SiC bei hohen Temperaturen muss daher eine andere Erscheinung verantwortlich gemacht werden und zwar ist die Erklärung in einer beginnenden *Entartung* des Elektronengases zu suchen<sup>3)</sup>. In der Tat gibt die für den Fall der beginnenden Entartung erweiterte WILSONsche Theorie die Verhältnisse, insbesondere den Abfall der Leitfähigkeit mit steigender Temperatur völlig richtig wieder. Genaueres wird in einer später erscheinenden Arbeit behandelt werden.

### 3. Zusammenhang zwischen $\epsilon$ und $A$ .

Durch Berechnung oder Extrapolation der in Fig. 5 und 6 dargestellten Kurven bis  $1/T = 0$  ergeben sich die Mengenkonsanten  $A$ , bzw.  $A_1$  und  $A_2$ . Ihre Werte sind ebenfalls in Tabelle 1

<sup>1)</sup> H. FRÖHLICH und N. F. MOTT, Proc. Roy. Soc. **171**, 496 (1939).

<sup>2)</sup> G. BUSCH und H. LABHART, demnächst in den H. P. A.

<sup>3)</sup> Diesen Hinweis verdanke ich Herrn LABHART.

zusammengestellt. Nun haben MEYER und NELDEL<sup>1)</sup> in einer sehr sorgfältigen experimentellen Arbeit nachgewiesen, dass für Halbleiter, deren Leitfähigkeit bei Zimmertemperatur weniger als etwa  $10^{-2} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$  beträgt, ein bemerkenswerter Zusammenhang zwischen der Mengenkonstanten  $A$  und der experimentell bestimmten thermischen „Aktivierungsenergie“  $\varepsilon_{\text{exp}}$  besteht nämlich:

$$\log A = \alpha + \beta \cdot \varepsilon_{\text{exp}}. \quad (9)$$

Nach MEYER und NELDEL besitzt die Beziehung (9) für  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  und event. auch für  $\text{UO}_2$  strenge Gültigkeit. Die schwach temperaturabhängige Mengenkonstante  $A$  enthält nach (2) als wesentliche Variable, die für die Leitfähigkeit der Störhalb-

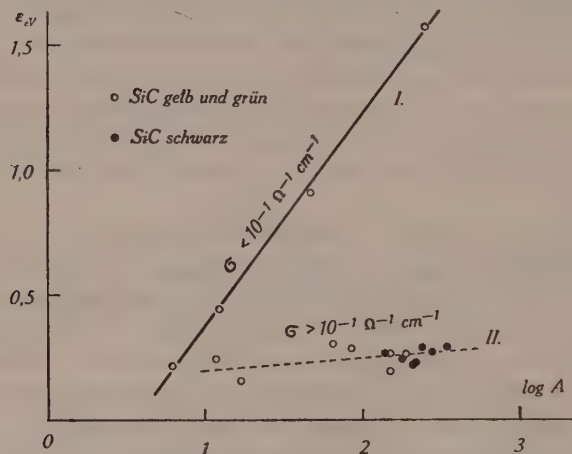


Fig. 7.

Zusammenhang zwischen den Mengenkonstanten  $A$  und der Aktivierungsenergie  $\varepsilon$  beim SiC.

leiter massgebend ist, die Konzentration  $n_D$  der Elektronenspenderstellen. Physikalisch muss demnach ein Zusammenhang zwischen der Konzentration der Störstellen und der thermischen Aktivierungsenergie vorhanden sein.

Entsprechend Formel (9) ist in Fig. 7 das Ergebnis unserer Messungen dargestellt. Tatsächlich ist auch für SiC-Kristalle, deren Leitfähigkeit bei Zimmertemperatur kleiner als etwa  $10^{-1} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$  ist, die Beziehung (9) erfüllt. Die entsprechenden Punkte fallen

<sup>1)</sup> W. MEYER und H. NELDEL, Zs. techn. Phys. **18**, 588 (1937).

sehr genau auf die Gerade *I* in Fig. 7 und gehören den vier SiC-Kristallen mit der geringsten beobachteten Leitfähigkeit an.

Alle andern Kristalle weisen eine beträchtlich höhere Leitfähigkeit auf. Die ihnen zugeordneten Punkte gruppieren sich in roher Näherung um eine viel flacher verlaufende Gerade *II*. Der Verlauf dieses Astes zeigt, dass  $\varepsilon$  nur sehr wenig oder überhaupt nicht von  $A$  abhängig ist. Ein völlig analoges Verhalten fanden auch MEYER und NELDEL für Halbleiter, deren Leitfähigkeit bei Zimmertemperatur  $10^{-1}\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$  übersteigt.

Es scheint somit, dass dem durch Gleichung (9), bzw. Fig. 7 dargestellten Zusammenhang zwischen der thermischen Aktivierungsenergie  $\varepsilon_{\text{exp}}$  und der Mengenkonzentrationen  $A$  grundsätzliche Bedeutung für den Mechanismus der Stör-Halbleitung zukommt.

Eine theoretische Deutung dieser Tatsache steht zur Zeit noch aus, doch wird in einer demnächst erscheinenden Arbeit<sup>1)</sup> eine Erklärung für die Beziehung (9) für den Fall kleiner Leitfähigkeiten auf Grund der Theorie der *Fehlordnung* in Kristallen gegeben. Die Gleichung (9) ergibt sich danach als exakt gültiges Gesetz.

Dass die thermische Aktivierungsenergie mit der Mengenkonzentration in irgendeiner Weise gekoppelt sein muss, ist schon längere Zeit bekannt und auch teilweise verständlich gemacht worden<sup>2)</sup>. Die Erklärung im Sinne einer zunehmenden Aufspaltung der diskreten Störniveaus in ein schmales Energieband bezieht sich auf die Tatsache, dass bei hinreichend hohen, bei Zimmertemperatur gemessenen Leitfähigkeiten ( $\sigma_{18^\circ} > 10^{-1}\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ ) die Aktivierungsenergie mit *zunehmender* Störstellenkonzentration  $n_D$ , bzw. Mengenkonzentration  $A$ , *abnimmt*. Diese Verhältnisse liegen nach den Experimenten von MEYER und NELDEL bei  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{ZnO}$  und  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  auch tatsächlich vor. Nach ihren Messungen ergeben sich in einem der Fig. 7 entsprechenden Diagramm sehr schwach *negativ* geneigte Geradenstücke. Die schwach positive Steigung des entsprechenden Astes *II* für SiC steht damit in Anbetracht der Unsicherheit der Extrapolationen der  $A$ -Konstanten nicht unbedingt in Widerspruch, zumal die Elektrizitätsleitung im SiC in ein und demselben Kristall zweifellos dadurch zustande kommt, dass sich Elektronen, bzw. Löcherleitung in energetisch verschiedenen Zonen überlagern.

Zum Schlusse benütze ich gerne die Gelegenheit, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER für das Interesse, welches er dieser Arbeit ent-

<sup>1)</sup> G. BUSCH, demnächst in den H. P. A.

<sup>2)</sup> Siehe z. B. MOTT-GURNEY, *Electronic Processes in Ionic Crystals*, Oxford 1940.



gegenbrachte, wie auch für die Überlassung der notwendigen experimentellen Hilfsmittel herzlich zu danken. Sodann möchte ich den Chemischen Fabriken und Elektrizitätswerken LONZA, Basel, den GOTTHARDWERKEN in Bodio und speziell ihrem Betriebsleiter, Herrn Dr. K. BURGHERR für die Freundlichkeit danken, mit der mir kostenlos grosse Mengen von schönen Kristallen zur Verfügung gestellt wurden.

Zürich, Physikalisches Institut ETH.

---

# Zusammenhang zwischen der Mengenkonstanten $A$ und der thermischen Aktivierungsenergie $\varepsilon$ im Leitfähigkeitsgesetz der Störhalbleiter

von G. Busch.

(1. IV. 1946.)

*Zusammenfassung.* Die WILSONsche Theorie wird für den Fall eines Überschusshalbleiters unter der Voraussetzung erweitert, dass die Lage der Elektronensponderstellen im Energieschema des Halbleiters nicht durch einen diskreten Wert  $\Delta B$ , sondern durch einen Bereich von endlicher Breite gegeben ist. Für die Leitfähigkeit  $\sigma$  existieren zwei Temperaturgebiete, in denen  $\ln \sigma$  als Funktion der reziproken absoluten Temperatur Geraden mit verschiedenen Neigungen darstellen. — Durch Übertragung der Fehlordnungstheorie in Kristallen auf das Halbleiterproblem ergibt sich der experimentell gefundene Zusammenhang  $\ln A = \alpha + \beta \cdot \varepsilon$  zwischen der Mengenkonstanten  $A$  und der thermischen Aktivierungsenergie  $\varepsilon$  als exakt gültiges Gesetz.

## 1. Einleitung.

Die elektrische Leitfähigkeit eines Halbleiters wird meistens in der Form

$$\sigma(T) = A_1(T) \cdot e^{-\frac{\Delta B_1}{2kT}} + A_2(T) \cdot e^{-\frac{\Delta B_2}{2kT}} \quad (1)$$

angegeben, welche in grossen Zügen die Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit aller Halbleitertypen wiederzugeben imstande ist. Die Koeffizienten  $A_1(T)$  und  $A_2(T)$  sind im allgemeinen *schwach* temperaturabhängig und werden neben den Exponentialfunktionen zumeist ausser acht gelassen. Im Falle reiner Eigen-, Überschuss- oder Mangelleitung genügt eine eingliedrige Formel, während sich die Einführung von mehr als zwei Gliedern bisher nicht als notwendig erwiesen hat. Prinzipiell wäre es allerdings denkbar, dass sich in ein und derselben Substanz alle drei Halbleitertypen überlagern, doch sind solche Fälle unseres Wissens nicht mit Sicherheit bekannt.

Wir beschränken uns im folgenden auf einen reinen Überschusshalbleiter, für welchen die Theorie das Leitfähigkeitsgesetz liefert

$$\sigma(T) = \frac{e^2}{m} f_0 \cdot \bar{\tau}_0 \cdot n'_H \quad (2a)$$

mit

$$n'_H = \frac{1}{2} \cdot \left( \frac{2m kT}{\pi \hbar^2 f_0} \right)^{3/4} \cdot n_D^{1/2} \cdot e^{-\frac{\Delta B}{2kT}}. \quad (2b)$$

Dabei bedeuten

$e, m$ : Ladung und Masse des Elektrons

$f_0$ : Freiheitszahl der Elektronen im Leitungsband

$\bar{\tau}_0$ : Mittlere Relaxationszeit der Elektronen im Leitungsband

$n_D$ : Zahl der Elektronenspenderstellen pro  $\text{cm}^3$

$\Delta B$ : Thermische Aktivierungsenergie.

Der Koeffizient  $A(T)$ , die sog. *Mengenkonstante* hat demnach folgende Bedeutung:

$$A(T) = e^2 \cdot \left( \frac{f_0}{2m} \right)^{1/4} \cdot \left( \frac{kT}{\pi \hbar^2} \right)^{3/4} \cdot \bar{\tau}_0 \cdot n_D^{1/2}. \quad (3)$$

Die Mengenkonstante enthält also ausser universellen Konstanten die Freiheitszahl  $f_0$  der Elektronen im Leitungsband, ihre mittlere Relaxationszeit  $\bar{\tau}_0$  und die Konzentration der Elektronenspenderstellen  $n_D$  als Variable, welche die Leitfähigkeit des Halbleiters mitbestimmen. Während die Werte für  $f_0$  und  $\bar{\tau}_0$  im allgemeinen in einem verhältnismässig engen Variationsbereich liegen, steht für  $n_D$  prinzipiell ein Spielraum von vielen Grössenordnungen zur Verfügung. Es ist daher zu erwarten, dass die Mengenkonstante  $A(T)$  in einem sehr grossen Wertebereich je nach der Art des Gitters und der Vorgeschichte des Halbleiters schwankt, und zwar *unabhängig* von der thermischen Aktivierungsenergie  $\Delta B$ . Aus der Veränderlichkeit von  $A(T)$  und  $\Delta B$  erklärt sich die Tatsache, dass die Leitfähigkeit der Halbleiter bei Zimmertemperatur zwischen  $10^{-10}$  und  $10^2 \text{ Ohm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$  liegen kann, ohne dass mit diesen Zahlenwerten grundsätzliche Grenzen gegeben wären. Lediglich im Gebiet hoher Leitfähigkeiten ( $\sigma > 1 \text{ Ohm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ ) machen sich Entartungserscheinungen des Elektronengases bemerkbar, wie von SHIFRIN<sup>1)</sup> eingehend erörtert worden ist.

Nun ergibt sich aber gerade für kleine Leitfähigkeiten ( $\sigma < 10^{-2} \text{ Ohm}^{-1} \text{ cm}^{-1}$ ) aus Messungen von MEYER und NELDEL<sup>2)</sup> an  $\text{ZnO}$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{UO}_2$  und am  $\text{SiC}^3)$ , dass zwischen der Mengen-

<sup>1)</sup> K. SHIFRIN, J. of Phys. of the USSR., VIII, 242 (1944).

<sup>2)</sup> W. MEYER und H. NELDEL, Zs. f. techn. Phys. **18**, 588 (1937).

<sup>3)</sup> G. BUSCH, H. P. A. **19**, 167 (1946).

konstanten  $A$  und der experimentell bestimmten Aktivierungsenergie  $\varepsilon_{\text{exp}}$  ein einfacher Zusammenhang in der Form

$$\ln A = \alpha + \beta \cdot \varepsilon_{\text{exp}} \quad (4)$$

besteht. Dieser Zusammenhang, welcher für kleine Leitfähigkeiten exakte Gültigkeit zu besitzen scheint, ist in Fig. 1 für die erwähnten Halbleiter dargestellt. Eine Erklärung dieser bemerkenswerten Beziehung wurde bisher nicht gegeben und soll daher im folgenden versucht werden.

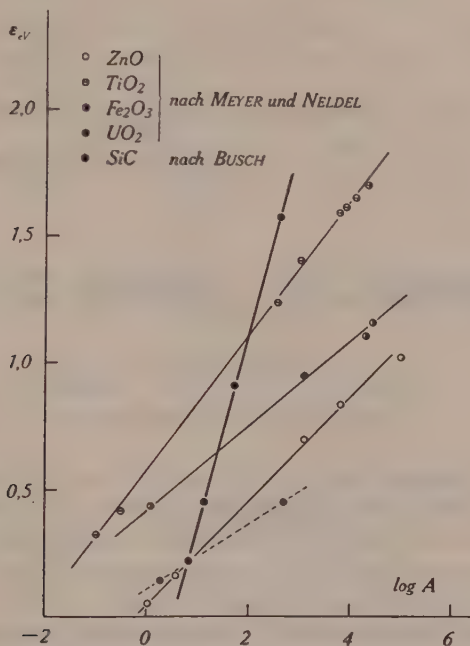


Fig. 1.

Zusammenhang  $\varepsilon \longleftrightarrow A$  für verschiedene Halbleiter.  
( $\sigma_{18^\circ} < 10^{-1} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ .)

## 2. Erweiterung der Wilsonschen Theorie.

Die Elektrizitätsleitung in Halbleitern, ausgenommen den Fall der Eigenleitung, muss ähnlich wie die Ionenleitung in Kristallen, als *Fehlordnung*phänomen aufgefasst werden. Während sich im Falle der Ionenleitung die Fehlstellen mit dem Kristallgitter in thermodynamischem Gleichgewicht befinden, ist dies für Halbleiter nicht der Fall. Hier handelt es sich vielmehr um eine Art



„eingefrorene Fehlordnung“. Dabei befinden sich die Fehlstellen und damit auch die Elektronenspenderstellen in energetisch unterschiedlichen Lagen des Kristallgitters, so dass die thermische Aktivierungsenergie nicht durch einen einzigen Wert  $\Delta B$ , sondern durch einen endlichen Wertebereich in Rechnung zu setzen ist. Auf diese Tatsache ist von SCHOTTKY<sup>1)</sup> hingewiesen worden. Im Energieschema des Halbleiters tritt daher an Stelle der scharfen „Störniveaus“ (Fig. 2a) ein „Störband“ von endlicher Breite, wie es in Fig. 2b veranschaulicht ist.

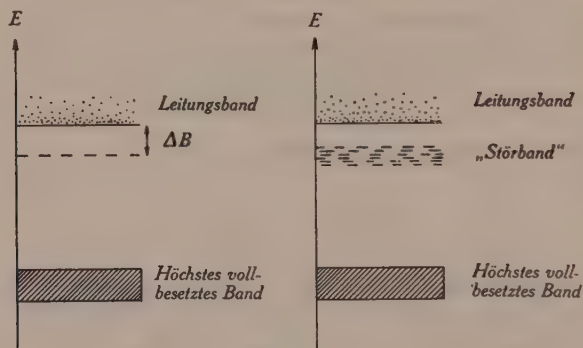


Fig. 2a.

Fig. 2b.

Energieschemata für Störhalbleiter.

Die Einführung eines „Störbandes“ wird naturgemäss die Form des Leitfähigkeitsgesetzes beeinflussen, welches in Analogie zur WILSONschen Herleitung gefunden werden kann<sup>2)</sup>, sofern eine Annahme über die Zahl der im Energieintervall  $dE$  verfügbaren Elektronenspenderstellen  $\Phi(E)dE$  gemacht wird. Versuche mit verschiedenen Funktionen  $\Phi(E)$  zeigten, dass das Endresultat in seinen wesentlichen Zügen von der Form dieser Funktion weitgehend unabhängig ist, so dass im folgenden mit dem einfachen Fall einer rechteckigen Verteilung der in Fig. 3 dargestellten Art gerechnet werden soll.

Die Funktion  $\Phi(E)$  sei durch folgende Bedingungen gegeben:

$$\begin{aligned} E < E_0 & : \Phi(E) = 0 \\ E_0 \leq E \leq E_0 + \Delta E & : \Phi(E) = \Phi_0 = \text{const} \\ E > E_0 + \Delta E & : \Phi(E) = 0. \end{aligned}$$

<sup>1)</sup> W. SCHOTTKY, Zs. El. Chem. 45, 33 (1939).

<sup>2)</sup> Siehe z. B. H. FRÖHLICH, Elektronentheorie der Metalle, Springer, Berlin 1936.

Die Anzahl der Spenderstellen pro  $\text{cm}^3$  ist somit

$$n_D = \int_{E_0}^{E_0 + \Delta E} \Phi(E) dE = \Phi_0 \cdot \Delta E. \quad (5)$$

Im thermischen Gleichgewicht ist die Zahl der freien Elektronen im Leitungsband gleich der Zahl der freien Plätze im Störband, d. h.

$$2 \underbrace{\int F(E) D(E) dE}_{\text{Leitungsband}} = \underbrace{\int (1 - F(E)) \Phi(E) dE}_{\text{Störband}}. \quad (6)$$

Dabei bedeutet  $F(E)$  die FERMI-DIRACsche Verteilungsfunktion mit der Grenzenenergie  $\zeta$ , welche im Leitungsband, d. h. für  $E > E_2$  durch  $F(E) \cong e^{-\frac{E-\zeta}{kT}}$  und im Störband, d. h. für  $E < E_0 + \Delta E$  durch  $1 - F(E) \cong e^{\frac{E-\zeta}{kT}}$  angenähert werden kann, sofern das

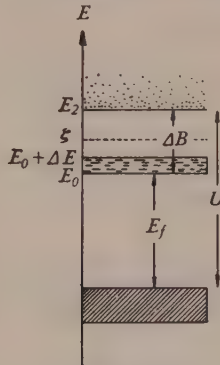


Fig. 3.

Vollständiges Energieschema eines Halbleiters mit Störband.

Elektronengas als nicht entartet betrachtet wird.  $D(E)$  ist die *Eigenwertdichte* der Elektronen im Leitungsband und hat im Grundgebiet vom Volumen  $R$  die Form

$$D(E) = \frac{R}{4\pi^2} \left( \frac{2m}{f_2 \cdot \hbar^2} \right)^{3/2} \cdot (E - E_2)^{1/2} \quad (7)$$

$f_2$  = Freiheitszahl der Elektronen im Leitungsband  
 $E_2$  = Energie des unteren Randes des Leitungsbandes.

Durch Einsetzen der Werte für  $F(E)$ ,  $\Phi(E)$  und  $D(E)$  geht (6) über in

$$2 \cdot \frac{R}{4\pi^2} \left( \frac{2m}{f_2 \hbar^2} \right)^{3/2} \int_{E_2}^{\infty} e^{-\frac{E-\zeta}{kT}} (E - E_2)^{1/2} dE = \int_{E_0}^{E_0 + \Delta E} \Phi_0 e^{\frac{E-\zeta}{kT}} dE. \quad (8)$$

Die linke Seite der Gleichung (8) lässt sich leicht integrieren und liefert die Zahl  $N'_H$  der freien Elektronen des Leitungsbandes im Grundgebiet, bzw. ihre Zahl pro  $\text{cm}^3$   $n'_H = \frac{N'_H}{R}$ :

$$n'_H = \frac{1}{4} \left( \frac{2m kT}{\pi \hbar^2 \cdot f_2} \right)^{3/2} \cdot e^{\frac{\zeta - E_2}{kT}}. \quad (9)$$

Die rechte Seite von (8) liefert mit (5):

$$\int_{E_0}^{E_0 + \Delta E} \Phi_0 e^{\frac{E - \zeta}{kT}} dE = n_D \frac{kT}{\Delta E} \cdot e^{\frac{E_0 - \zeta}{kT}} \left( e^{\frac{\Delta E}{kT}} - 1 \right). \quad (10)$$

Durch Gleichsetzen der rechten Seiten von (9) und (10) findet man die Grenzenergie  $\zeta$  in der Form

$$e^{\frac{\zeta}{kT}} = 2 \left( \frac{\pi \hbar^2 \cdot f_2}{2m kT} \right)^{3/4} \cdot n_D^{1/2} \cdot \left( \frac{kT}{\Delta E} \right)^{1/2} \cdot e^{\frac{E_0 + E_2}{2kT}} \left( e^{\frac{\Delta E}{kT}} - 1 \right)^{1/2}$$

und durch Einsetzen in (9):

$$n'_H = \frac{1}{2} \left( \frac{2m kT}{\pi \hbar^2 f_2} \right)^{3/4} \cdot n_D^{1/2} \cdot \left( \frac{kT}{\Delta E} \right)^{1/2} \cdot \left( e^{\frac{\Delta E}{kT}} - 1 \right)^{1/2} e^{-\frac{\Delta B}{2kT}} \quad (11)$$

wobei für  $E_2 - E_0 = \Delta B$  gesetzt worden ist.

Mit (2a) und (3) ergibt sich somit für die Leitfähigkeit:

$$\sigma_H(T) = A(T) \cdot \left( \frac{kT}{\Delta E} \right)^{1/2} \cdot \left( e^{\frac{\Delta E}{kT}} - 1 \right)^{1/2} \cdot e^{-\frac{\Delta B}{2kT}}. \quad (12)$$

### Diskussion.

a) Für hohe Temperaturen, bzw. kleine Breite des Störbandes, so dass  $\frac{\Delta E}{kT} \ll 1$ , folgt durch Entwickeln der *e-Funktion* sofort die bekannte Formel

$$\sigma_H(T) = A(T) \cdot e^{-\frac{\Delta B}{2kT}}. \quad (13)$$

b) Im entgegengesetzten Fall, d. h. für  $\frac{\Delta E}{kT} \gg 1$  und damit auch  $\frac{\Delta B}{kT} \gg 1$ , also für kleine Leitfähigkeiten, ergibt sich

$$\sigma_H(T) = A(T) \cdot \left( \frac{kT}{\Delta E} \right)^{1/2} \cdot e^{-\frac{\Delta B - \Delta E}{2kT}}. \quad (14)$$

Wird, wie dies im allgemeinen üblich ist,  $\ln \sigma_H$  als Funktion der reziproken Temperatur  $T$  dargestellt, so ergibt die Gleichung (12) eine Kurve, welche für hohe Temperaturen in eine durch Gleichung (13), für tiefe Temperaturen in eine durch Gleichung (14) gegebene Gerade mit der um den Betrag  $\frac{\Delta E}{2k}$  kleineren Steilheit übergeht. In der Tat zeigt sich dieses in Fig. 4 veranschaulichte Verhalten bei Halbleitern sehr häufig und braucht nach dem Vorstehenden *nicht* auf die Überlagerung zweier Halbleitertypen zurückgeführt zu werden.

Dagegen zeigt sich eindeutig, dass die starken Knicke der  $\ln \sigma (1/T)$ -Kurven der schwarzen Modifikation des SiC<sup>1)</sup> *nicht* durch

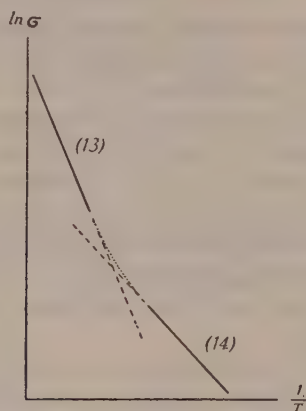


Fig. 4.

Prinzipieller Verlauf der Leitfähigkeit eines Halbleiters mit Störband.

die Existenz eines Störbandes von endlicher Breite erklärt werden können. Der Unterschied  $\Delta E$  der den Steilheiten des Hoch- und Tieftemperaturzweiges entsprechenden Aktivierungsenergien beträgt in diesem Falle etwa 0,2 eV, so dass sich das Übergangsgebiet, für welches  $\Delta E \approx k \cdot T$  ist, bei einer Temperatur von ca. 2300° K befinden müsste, was völlig ausser Betracht fällt. Die Annahme einer Überlagerung von zwei verschiedenen Halbleitertypen, bzw. Elektronen- oder Löcherleitung in energetisch verschiedenen Zonen, scheint in diesem Falle gerechtfertigt und wird durch Messungen des Halleffektes auch bestätigt.

1) G. BUSCH, loc. cit.



### 3. Fehlordnung und Halbleitereigenschaften.

Es steht heute wohl ausser jedem Zweifel, dass das Phänomen der Halbleitung in der überwiegenden Zahl der bekannten Fälle als *Fehlordnungserscheinung* gedeutet werden muss. Wie oben angedeutet, handelt es sich hierbei jedoch nicht um eine Fehlordnung im thermischen Gleichgewichtszustand mit dem Kristallgitter, welche, da die meisten Halbleiter Ionengitter besitzen, eine Ionenleitung zur Folge hätte. Ionenleitung bleibt ja bei der Diskussion der Halbleitung stets ausgeschlossen. Ferner wird vorausgesetzt, dass die Zahl der Elektronenspenderstellen  $n_D$  innerhalb eines weiten Temperaturbereiches, in welchem die Messungen durchgeführt werden, konstant, d. h. temperaturunabhängig ist. Andererseits erreicht man aber gerade durch thermische Behandlung in geeigneten Gasatmosphären eine Veränderung der Konzentration der Spenderstellen. Es muss daher angenommen werden, dass  $n_D$ , bzw. die Zahl  $\Phi(E)dE$  der den Spenderstellen zur Verfügung stehenden Energiestufen pro Intervall  $dE$  eine Funktion der Temperatur  $\Theta$  ist, bei welcher die Fehlordnung „einfriert“. Es liegt nahe, für die Funktion  $\Phi(E, \Theta)$  in Abhängigkeit von der „Einfriertemperatur“  $\Theta$  und der den Spenderstellen zuzuordnenden *Fehlordnungsenergie*  $E_f$  in Übereinstimmung mit Abschnitt 2, unter der wohl stets erfüllten Bedingung  $E_f \gg \Delta E$ , den Ansatz zu machen:

$$\Phi(E, \Theta) = \Phi_0(\Theta) = c^2 \cdot e^{-\frac{E_f}{k\Theta}} \quad (15)$$

$c$  hat formal die Bedeutung einer Normierungskonstanten. Physikalisch wird sie in komplizierter Weise von der speziellen Art des Kristallgitters, sowie von den die Umgebung des Kristalls charakterisierenden Daten, wie Art und Druck des Gases, Dauer deren Einwirkung bei der Entstehung, bzw. Nachbehandlung des Halbleiters usw., abhängen.

Das vollständige Energieschema des in der vorliegenden Art beschriebenen Halbleiters ist in Fig. 3 dargestellt. Die Gesamtenergie  $U$ , die nötig ist, um ein Atomelektron des ungestörten Kristallgitters, d. h. aus dem höchsten vollbesetzten Band in das Leitungsband zu befördern, ist demnach

$$U = E_f + \Delta B. \quad (16)$$

Damit wird

$$\Phi_0(\Theta) = c^2 \cdot e^{-\frac{U - \Delta B}{k\Theta}}$$

und wegen der Normierung (5)

$$\frac{n_D}{\Delta E} = \Phi_0(\Theta)$$

folgt:

$$\left(\frac{n_D}{\Delta E}\right)^{1/2} = \Phi_0^{1/2}(\Theta) = c \cdot e^{-\frac{U-\Delta B}{2k\Theta}}. \quad (17)$$

Führt man diesen Ausdruck unter Berücksichtigung von (3) in (14) ein, so findet man

$$\sigma_H(T) = A'(T) \cdot e^{-\frac{U-\Delta B}{2k\Theta}} \cdot e^{-\frac{\Delta B-\Delta E}{2kT}}$$

mit der neuen Mengenkonstanten

$$A'(T) = e^2 \left(\frac{f_0}{2m}\right)^{1/4} \cdot \frac{(kT)^{5/4}}{(\pi \hbar^2)^{3/4}} \cdot \tau_0 \cdot c.$$

Nun wird entsprechend der Gleichung (14) *experimentell* nicht  $\Delta B$ , sondern

$$\Delta B - \Delta E = \varepsilon_{\text{exp}}$$

als thermische Aktivierungsenergie beobachtet, d. h.

$$\sigma_H(T) = A'(T) \cdot e^{-\frac{U-\Delta E-\varepsilon_{\text{exp}}}{2k\Theta}} \cdot e^{-\frac{\varepsilon_{\text{exp}}}{2kT}}. \quad (18)$$

Vergleicht man nun (18) mit der gebräuchlichen *empirischen* Form des Leitfähigkeitsgesetzes

$$\sigma_H(T) = A_{\text{exp}} \cdot e^{-\frac{\varepsilon_{\text{exp}}}{2kT}}$$

so wird die Mengenkonstante

$$A_{\text{exp}} = A'(T) \cdot e^{-\frac{U-\Delta E}{2k\Theta}} \cdot e^{-\frac{\varepsilon_{\text{exp}}}{2k\Theta}}. \quad (19)$$

Durch Logarithmieren findet man sofort

$$\ln A_{\text{exp}} = \alpha + \beta \cdot \varepsilon_{\text{exp}} \quad (20)$$

wobei

$$\alpha = \ln A'(T) - \frac{U-\Delta E}{2k\Theta}$$

und

$$\beta = \frac{1}{2k\Theta} \quad (20a)$$

bedeuten.

Die Formel (20) drückt genau den experimentellen Befund von MEYER und NELDEL für das Gebiet *kleiner* Leitfähigkeiten ( $\sigma_{18^\circ} < 10^{-2} \Omega^{-1} \text{cm}^{-1}$ ) aus.

Es fragt sich nun, wie weit die Formel (20) die Verhältnisse auch quantitativ richtig wiedergibt. Bedauerlicherweise lässt sich über die Konstante  $\alpha$  nichts aussagen, da sie zu viele unbekannte Grössen wie  $U$ ,  $\Delta E$ ,  $c$ ,  $\bar{\tau}_0$ ,  $f_0$  enthält. Aus Fig. 1 lassen sich jedoch den Steilheiten der Geraden die Werte für  $1/\beta$  entnehmen. Daraus können nach (20a) die den verschiedenen Halbleitern zuzuordnenden „Einfriertemperaturen“  $\Theta$  berechnet werden, über welche leider auch keine anderweitigen Kenntnisse vorliegen. Wie die nachstehende Tabelle zeigt, ergeben sich aber Einfriertemperaturen von durchaus vernünftiger Grösse. Zum Vergleich wurden in der 3. Kolonne der untenstehenden Tabelle unter  $T_D$  diejenigen Temperaturen angeführt, bei welchen nach den Arbeiten von FRITSCH<sup>1)</sup>, MEYER und NELDEL<sup>2)</sup> und nach unseren eigenen Erfahrungen am SiC, bei thermischer Behandlung im Vakuum offenbar eine merkliche Dissoziation, und damit „Auftauen“ der eingefrorenen Fehlordnung einsetzt.

Halbleiter	$\Theta_{\text{berechnet}}$	$T_D$ geschätzt
SiC	950° K	~1100° K
TiO <sub>2</sub>	685	~ 700
ZnO	533	~ 600
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	430	~ 400
(UO <sub>2</sub> )	(340 ?)*)	(>1000 ?)

\*) Wert unsicher, da nur 2 Messpunkte vorliegen!

Wie aus dieser Tabelle hervorgeht, besteht in der Tat eine unverkennbare Korrelation zwischen  $\Theta$  und  $T_D$ , was für die Richtigkeit der dargelegten Erklärung spricht. Der Beziehung (20) scheint demnach eine grundsätzliche Bedeutung für den Mechanismus der Störhalbleitung zuzukommen, und es wäre sehr zu wünschen, wenn ihre Gültigkeit an einem umfangreicheren experimentellen Material geprüft werden könnte.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

<sup>1)</sup> O. FRITSCH, Ann. d. Phys. (5) **22**, 375 (1935).

<sup>2)</sup> Loc. cit.

## Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft

in Aarau, am 4. Mai 1946.

Präsident: Prof. Dr. G. WENTZEL (Zürich),  
Vizepräsident: Prof. Dr. E. MIESCHER (Basel),  
Sekretär: Priv.-Doz. Dr. G. BUSCH (Zürich).

---

### *Geschäftlicher Teil.*

Als ordentliche Mitglieder der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft wurden aufgenommen: HH. Prof. E. BAUMANN (Zürich); Dr. P. FREY (Utzenstorf); F. VILLARS (Zürich); M. GABRIEL (Zürich); W. BOLLMANN (Zürich); M. WALTER (Zürich); H. SAURER (Zürich); G. INDUNI (Zürich); P. B. BOUVIER (Genf); A. KIND (Zürich); E. WETTSTEIN (Fislisbach); F. BOSSARD (Zug); Dr. K. TÄUBER (Zürich); E. TRUCCO (Bern); Dr. G. J. EKKERT (Zürich); R. STEFFEN (Zürich).

Die S.P.G. zählt zur Zeit 302 Mitglieder.

Der Jahresbericht, die Jahresrechnung und der Revisorenbericht pro 1945 werden verlesen und genehmigt.

Der von Herrn Prof. GRUNER erstattete Bericht der Redaktionskommission der Helvetica Physica Acta wird verlesen und unter bester Verdankung genehmigt.

An Stelle der aus der Redaktionskommission der H.P.A. zurücktretenden Herren Prof. HAGENBACH und Prof. GRUNER werden neu in die Redaktionskommission gewählt: Prof. P. HUBER (Basel); Prof. A. MERCIER (Bern) und als Redaktor der H.P.A. Prof. M. FIERZ (Basel). Den Herren Prof. HAGENBACH und GRUNER dankt die Schweizerische Physikalische Gesellschaft offiziell für ihre langjährige und erfolgreiche Arbeit im Interesse der H.P.A.

Die nächste Sitzung wird im Rahmen der 126. Jahresversammlung der Schweizerischen Naturforschenden Gesellschaft in Zürich stattfinden.

---



# Untersuchungen an einer Ionenquelle von 60 kV Betriebsspannung

von P. HUBER und F. METZGER (Basel).

Beim Bau einer Ionenquelle für kernphysikalische Messungen wird man darnach trachten, bei sicherem Betrieb einen möglichst grossen Ionenstrom zu erhalten. In dieser Richtung erzielte HAILER<sup>1)</sup> durch Einführen einer Anodenblende in seine Hochspannungsgasentladung eine Verbesserung der Ausbeute gegenüber den früheren Konstruktionen<sup>2)</sup>. Seine Erfahrungen verwendeten wir beim Bau einer Ionenquelle für einen 200-kV-Neutronengenerator.

Beim Betrieb der Gasentladung zeigte es sich, dass bei Drucken von einigen Hundertstel mm Hg in der Entladungsröhre die Stabilität bei Spannungen oberhalb 45 kV schlecht wird. Wir verteilten durch Spannungsverdoppelungsschaltung die Betriebsspannung zu gleichen Teilen auf zwei Isolationsstrecken und erreichten dadurch einwandfreien Betrieb bei 60 kV (Fig. 1).

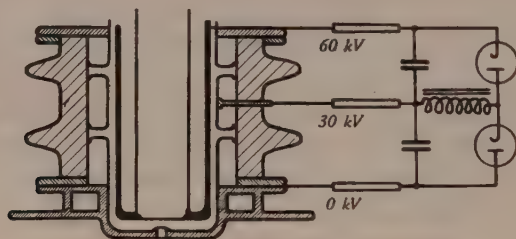


Fig. 1.

Ionenquelle für 60-kV-Betriebsspannung.

Ausgehend von Beobachtungen an Kanälen von sehr verschiedenen Dimensionen, aber gleichen Pumpwiderständen, untersuchten wir den Einfluss von Lage und Form der Kanäle auf den Ionenstrom. Bei allen Messungen wurde im Beschleunigungsraum ein Druck von weniger als  $4 \cdot 10^{-4}$  mm Hg aufrechterhalten. Die Pumpgeschwindigkeit betrug 100 Liter Luft pro Sekunde. Die Versuche zeigten, in Übereinstimmung mit einer Bemerkung von SEEMANN und ORBAN<sup>3)</sup>, dass der Kanalstrahlpinsel in der Gegend des Kanals verjüngt ist, d. h., dass die Stromdichte sich in diesem Gebiet merklich verändert. Die genaue Lage der Stelle grösster Stromdichte und das Ausmass der Dichteänderung bestimmten wir mit Hilfe eines Faradaykäfigs (Fig. 2). Der Käfig wurde bei

<sup>1)</sup> C. HAILER, Diss. T. H., Berlin D 83.

<sup>2)</sup> Z. B. A. BOUWERS, F. A. HEYN und A. A. KUNTKE, Physica 4, 153, 1937.

<sup>3)</sup> H. SEEMANN und G. ORBAN, Ann. Physik (5), 23, 137, 1935.

konstant gehaltener Gasentladung (60 kV, ca. 1 mA) im etwas ausgebohrten Kanal (8 mm  $\varnothing$ ) in seiner Längsrichtung verschoben. Den Verlauf des so gemessenen Käfigstroms bei konstanter Ein-

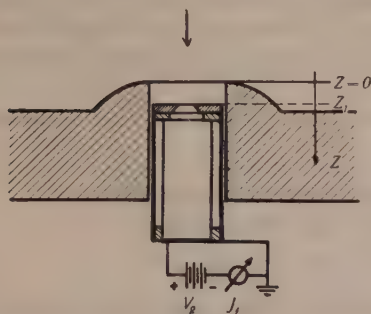


Fig. 2.

Faradaykäfig im ausgebohrten Kanal und Anordnung zur Messung der Änderung des Gesamtstromes  $J_f$  in Abhängigkeit von  $Z$ . ( $V_g$ : Gegenspannung Faradaykäfig.)

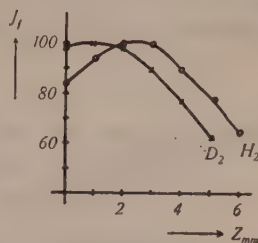
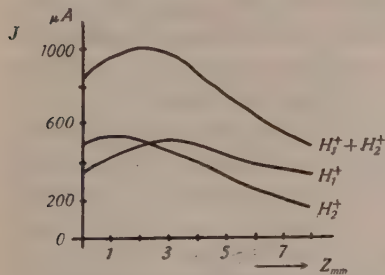


Fig. 3.

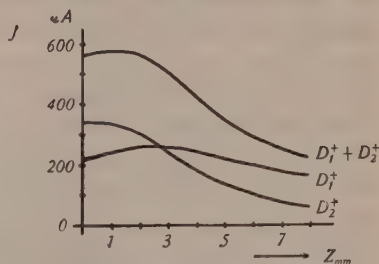
Gesamtstrom, aufgenommen mit Faradaykäfig.  $J_f$  in rel. Mass.

trittsblende des Käfigs (Molybdän 1,3 mm  $\varnothing$ ), d. h. also auch den Verlauf der Stromdichte, gibt Fig. 3 wieder.

Mit Kanaleinsätzen, die sich nur durch die Lage der Bohrungen (3 mm lang, 2 mm  $\varnothing$ ) unterschieden, konnten wir die Messungen mit dem Faradaykäfig bestätigen und zudem noch, durch Nachbeschleunigung und magnetische Trennung, das Verhältnis  $H_1^+/H_2^+$  als Funktion der Lage der Bohrung messen. Werden



4a: mit leichtem Wasserstoff.



4b: mit schwerem Wasserstoff.

Fig. 4.

Die Anteile von Atomionen und Molekülionen am Gesamtstrom in Abhängigkeit von der Blendenlage (Bohrung 3 mm lang, 2 mm  $\varnothing$ ).

die Messungen mit dem Faradaykäfig mit diesen Messungen der Verhältnisse von Atomionen zu Molekülionen kombiniert, so erhält man den in Figur 4 dargestellten Verlauf der Stromdichten von

$H_1^+$  bzw.  $H_2^+$ . Die Kenntnis dieses Zusammenhanges setzt uns in die Lage, die eine oder andere Ionenart durch entsprechende Wahl der Kanalstellung zu bevorzugen. Mit dem in bezug auf seine Atomionenausbeute günstigsten Kanal erzielten wir bei 60—65 kV Gasentladungsspannung und ca. 18 mA Entladungsstrom Kanalströme bis zu 1,2 mA. Dabei betrug der magnetisch abgelenkte Protonenstrom 550—650  $\mu A$ .

---

**Beobachtungen über Materialtransport in Gasentladungen.  
Ein Beitrag zum Problem der Rückzündung**

VON WALTER DÄLLENBACH, Zürich.

Aus Beobachtungen beim Betrieb von Quecksilberdampfgleichrichtern wird geschlossen, dass — was für die Vermeidung von Rückzündungen von Interesse ist — an allen Elementen der aktiven Anodenoberflächen von Gasentladungsgleichrichtern der Wegtransport von Material in den Sperrperioden über den Zutransport in den Stromperioden nur dann auch bei kleinen Lasten überwiegt, wenn die Wahrscheinlichkeit der Stromaufnahme für alle Elemente der aktiven Anodenoberflächen angenähert gleich ist.

---

**Eine verbesserte Untersetzerschaltung und ihre Verwendung in einem  
256-fach-Untersetzer, Impulsgeber und Zeitmessgerät**

VON E. BALDINGER, Basel.

Fast alle Untersetzerschaltungen mit Hochvakuumröhren verwenden das von TURNER bereits 1920 beschriebene Kallirotron. Das Kallirotron besitzt die zur Verwirklichung einer zweifach-Untersetzerstufe notwendigen zwei stabilen Zustände. Es muss noch dafür gesorgt werden, dass bei jedem Steuerimpuls die Schaltung von einem in den andern stabilen Zustand übergeht und dass die Anordnung genügende Toleranzen bezüglich der Höhe, Breite und Form des Steuerimpulses aufweist. Die in Fig. 1 dargestellte neue Untersetzerschaltung erfüllt obige Forderungen. Durch die Widerstände  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$  wird erreicht, dass die negativen Steuerimpulse (auf positive Impulse ist die Schaltung unempfindlich) nur auf das Steuergitter derjenigen Röhre gelangen, die Anodenstrom führt. Bei geeigneter Dimensionierung kann erreicht werden, dass am Punkte A (Röhre I, ohne Anodenstrom) eine Spannung von ca. 50 Volt und am Punkte A' (Röhre II, voller Anodenstrom) eine solche von ca. 5 Volt gegenüber den Kathoden

herrscht. Der Steuerimpuls wird bei  $A$ ,  $A'$  über Kondensatoren zugeführt und muss dementsprechend an  $A'$  5 Volt überschreiten, damit er auf das Steuergitter der Röhre II wirkt, und darf 50 Volt (positive Vorspannung von  $A$ ) nicht überschreiten, damit das Steuergitter I nicht merklich beeinflusst wird. Durch die Kondensatoren  $C$  können die positiven Vorspannungen von  $A$ ,  $A'$  über die Umkippszeit der Stufe aufrechterhalten werden, wodurch eine genügende Toleranz für die zulässige Impulsbreite gewährleistet

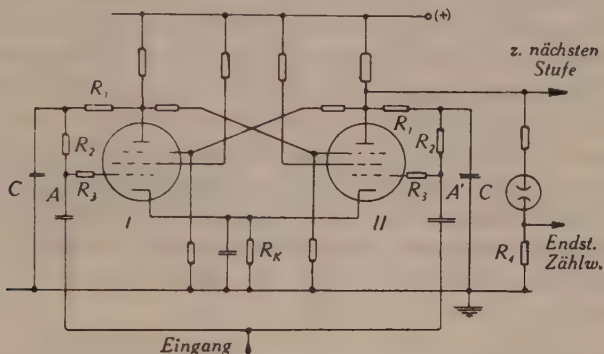


Fig. 1.  
Betriebssichere Untersetzstufe.

wird und gleichzeitig das Auflösungsvermögen der Stufe leicht eingestellt werden kann.

Eine weitere Verbesserung der Anordnung erzielt man durch den gemeinsamen Kathodenwiderstand  $R_K$ , durch den eine separate negative Gittervorspannung vermieden und gleichzeitig eine weitgehende Unempfindlichkeit gegenüber der Grösse der Speisepannung  $U_0$  erreicht wird.

Zur Interpolation ist an einer Anode wie üblich ein Signallämpchen angeschlossen. Am Seriewiderstand  $R_4$  erhält man gleichzeitig eine Rechteckspannung, die zur Steuerung der Endstufe, welche das Zählwerk betreibt, zweckmässig zu verwenden ist.

Die in Fig. 1 dargestellte Schaltung wurde zum Bau eines 256fach-Untersetzers verwendet, der als Kurzzeitmesser und Testgerät ausgebaut ist. Der Apparat ist seit ca. einem Jahr in Betrieb und arbeitet zur vollen Zufriedenheit.

Eine geeignete Eingangsstufe erlaubt sowohl positive wie negative als auch sinusförmige Eingangsspannungen. Untersetzung und Auflösungsvermögen der 1. Stufe sind einstellbar. Der Apparat kann in Verbindung mit einer Stoppuhr, die automatisch mit



dem Untersetzer eingeschaltet wird, als genauer Frequenzmesser von einigen Hertz bis ca. 10000 Hz verwendet werden. Er ist ferner als Kurzzeitmesser ausgebildet. Der zeitliche Abstand zweier Impulse wird dadurch bestimmt, dass während dieses Zeitintervalls der Untersetzer die Zahl der Schwingungen eines eingebauten Generators abzählt. Die Frequenz dieses Generators kann mit dem Untersetzer genau bestimmt werden.

Eine vollständige Prüfung von Impulsverstärkern für zeitlich statistisch verteilte Impulse lässt sich am einfachsten mit Impulsgruppen durchführen. Da ein Untersetzer ein geeignetes Hilfsmittel zum Abzählen von Impulsgruppen darstellt, ist der Apparat gleichzeitig als Testgerät eingerichtet. Der Untersetzer zählt von einem eingebauten Kippgenerator, dessen Frequenz einstellbar ist, Impulsgruppen von genau 64 Einzelimpulsen gleicher Form ab. Diese können direkt zur Prüfung von mechanischen Zählwerken oder mit einstellbarer Form zur Untersuchung von Verstärkern und anderen Untersetzern verwendet werden. Anstiegs- und Abklingzeit dieser Testimpulse sind mit Hilfe von 2 *RC*-Gliedern einstellbar.

---

#### **Eine Methode zur Messung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionen-schlauches im schnellen Zählrohr**

von P. HUBER, F. ALDER und E. BALDINGER, Basel.

Werden im schnellen Zählrohr (bei den folgenden Messungen wurde eine Argon-Alkohol-Füllung benützt) Elektronen ausgelöst, so wandern diese auf den Draht zu. In dessen Nähe erzeugen sie eine Elektronenlawine. Infolge ihrer grossen Beweglichkeit werden die Elektronen auf dem Zählrohr rasch gesammelt, und es bleibt eine positive Ionenwolke zurück. Gleichzeitig mit der Elektronenlawine entstehen auch Lichtquanten, die sich nach allen Seiten gleichmässig ausbreiten. Diese Lichtquanten werden nach wenigen Millimetern absorbiert<sup>1)</sup>, wobei einige der Lichtquanten Photoelektronen aus den Alkoholmolekülen auslösen. Falls das elektrische Feld, das die Photoelektronen nun ebenfalls auf den Draht befördert, genügend gross ist, erzeugen diese weitere Elektronenlawinen und Lichtquanten. Unter gleichzeitiger Ausbreitung längs des Drahtes wiederholt sich dieser Vorgang so lange, bis der ganze Draht von einem positiven Ionenschlauch eingehüllt ist, der das elektrische Feld am Draht so weit herabsetzt, dass keine neuen Elektronenlawinen mehr entstehen können.

---

<sup>1)</sup> P. HUBER und F. ALDER, H. P. A. **18**, 232, 1945.

Wir haben die Geschwindigkeit, mit der sich dieser positive Ionenschlauch ausbreitet nach zwei verschiedenen Methoden gemessen. Die hier benützte verwendet das gleiche Prinzip wie der Versuch von FIZEAU zur Bestimmung der Lichtgeschwindigkeit mit zwei rotierenden Zahnrädern.

Den wichtigsten Teil der Versuchsanordnung (Fig. 1) bildet ein Zählrohr mit zwei elektrischen Blenden, die von der Zählrohrwand

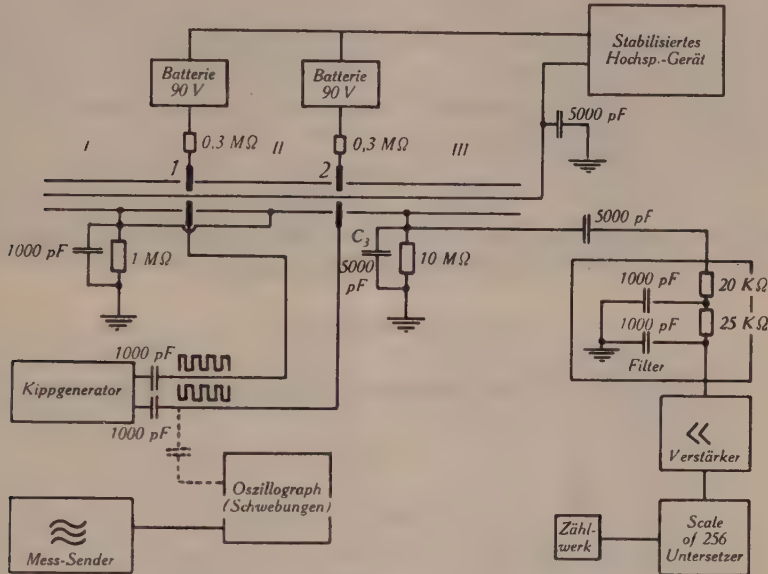


Fig. 1.

Messanordnung zur Bestimmung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches.

isoliert sind. Durch Veränderung des Potentials an diesen Lochblenden kann die elektrische Feldstärke am Draht so gesteuert werden, dass sich der Ionenschlauch durch die Blenden hindurch ausbreiten kann, bzw. an ihnen aufgehalten wird. Das Steuern der Blenden geschieht durch äquidistante Rechteckimpulse, die von einem Kippgenerator geliefert werden. Die Blenden werden im Gegentakt gesteuert, so dass während je einer halben Periode die eine Blende geöffnet, die andere geschlossen ist, und umgekehrt.

Im Teil I des Zählrohrs werden durch ein radioaktives Präparat Entladungen ausgelöst. Bei geöffneter Blende 1 breitet sich der Ionenschlauch in den Teil II aus. Wenn die Blende 2 im Moment der Ankunft des Ionenschlauchs gerade geöffnet ist, greift die

Entladung in den dritten Teil des Zählrohrs über. Die hier ausgelösten Impulse werden verstärkt und gezählt.

Zur Frequenzmessung wird die Spannung des Kippgenerators mit derjenigen eines geeichten Mess-Senders verglichen, indem die Schwebungen auf einem Oszillographen beobachtet werden.

Erhöht man die Steuerfrequenz von Null an ausgehend, so nimmt die Zahl der registrierten Impulse zu. Sie erreicht ein Maximum, wenn die Laufzeit des Ionenschlauchs im mittleren Teil des Zählrohrs gerade gleich der halben Schwingungsdauer der Kippspannung ist. Bei der doppelten Frequenz zählt man ein Minimum, bei der dreifachen wieder ein Maximum usw. Nennen wir die Frequenz für das erste Maximum  $f_0$ , so gilt also für die Laufzeit des Ionenschlauchs

$$t_0 = \frac{1}{2} T_0 = \frac{1}{2f_0}$$

und bei Kenntnis des Abstandes der beiden Blenden ( $d = 22$  cm) findet man für die Ausbreitungsgeschwindigkeit

$$v = \frac{d}{t_0} = 2 \cdot d \cdot f_0.$$

Als Beispiel sei eine Messkurve wiedergegeben (Fig. 2).

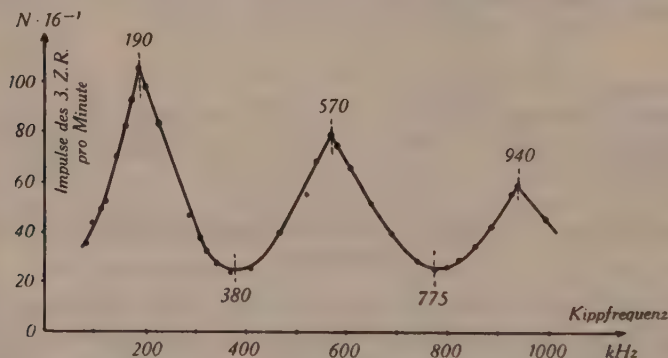


Fig. 2.

Impulszahl im Teil III als Funktion der Kippfrequenz.

Zählrohrfüllung: 16 mm Alkohol, 64 mm Argon; Zählrohrspannung 1100 Volt; Zählrohdrahtdurchmesser 0,015 cm; Zylinderdurchmesser 1,8 cm.

Die Minima und Maxima liegen in regelmässigen Abständen. Die Frequenz  $f_0$  für das erste Maximum ist 190 kHz. Damit ergibt sich für die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauchs bei diesen Betriebsbedingungen

$$v = 8,35 \cdot 10^8 \frac{\text{cm}}{\text{sec}}.$$

## Über die Impulsform im schnellen Zählrohr

von P. HUBER, F. ALDER, E. BALDINGER und F. METZGER, Basel.

Ein primäres Elektron erzeuge im Zählrohr eine Ionenlawine von der Ladung  $q^*$  Clb pro cm Draht. Arbeitet das Zählrohr bei genügend hoher Spannung, z. B. im Geigerbereich, so entstehen in der Entladung Lichtquanten, die eine Ausbreitung des primären Ionenschlauches mit der Geschwindigkeit  $v$  längs des Drahtes bewirken<sup>1)</sup>. Aus dieser Vorstellung heraus lässt sich der Stromimpuls vollständig berechnen<sup>2)</sup>.

Verantwortlich für den im Zählrohr fließenden Strom sind die zur Kathode abwandernden positiven Ionen. Die Elektronen können vernachlässigt werden, da sie sehr kurze Strecken bis zum Zählrohrdraht zurücklegen. Der Strom  $J^*(t)$ , herrührend von der nach der Kathode fließenden Ladung  $q^*$  lässt sich aus der Beweglichkeit berechnen und ergibt in erster Näherung

$$J^*(t) = \frac{A}{t + \tau}.$$

$$A \text{ und } \tau \text{ sind Abkürzungen für } A = \frac{q^*}{2 \ln \frac{b}{a}}, \quad \tau = \frac{2 \pi \epsilon_0 \cdot a^2}{\beta (2 Q_0 - q^*)}$$

$b$  = Zählrohrdurchmesser

$a$  = Drahtdurchmesser

$\beta$  = Beweglichkeit der Ionen im Zählrohr

$Q_0$  = Ladung des Drahtes pro cm ohne Raumladung

$$\epsilon_0 = 8,86 \cdot 10^{-14} \frac{\text{Amp sec}}{\text{Volt cm}}.$$

Der Gesamtstrom  $J(t)$  ist die Summe aller  $J^*$ , die durch die Ausbreitung des Ionenschlauches entstehen. Wird die erste Ionenlawine im Abstand  $d$  von einem Zählrohrende gebildet ( $l$  = Zählrohrlänge), so erhalten wir als Gesamtstrom  $J(t)$ :

a) für die Zeit  $t \leq \frac{d}{v}$  = Ausbreitungszeit des Ionenschlauches bis zum näheren Zählrohrende

$$J_1(t) = 2 \int_0^{x=v \cdot t} J^* \left( t - \frac{x}{v} \right) dx = 2 A v \ln \frac{t + \tau}{\tau};$$

<sup>1)</sup> P. HUBER und F. ALDER, Helv. Phys. Acta XVIII, 232 (1945).

<sup>2)</sup> GEMERT, HARTOG und MÜLLER, Physica IX, 556 (1942).





angeregt, so dass Zeitablenkung und Schwingung synchron waren. In Fig. 2 sind drei aufgenommene Stromkurven und eine Eichfrequenz dargestellt. Die Stromkurven werden entsprechend der Zeiteichung im Zeitmaßstab entzerrt (Fig. 3). Aus der Anstiegs-

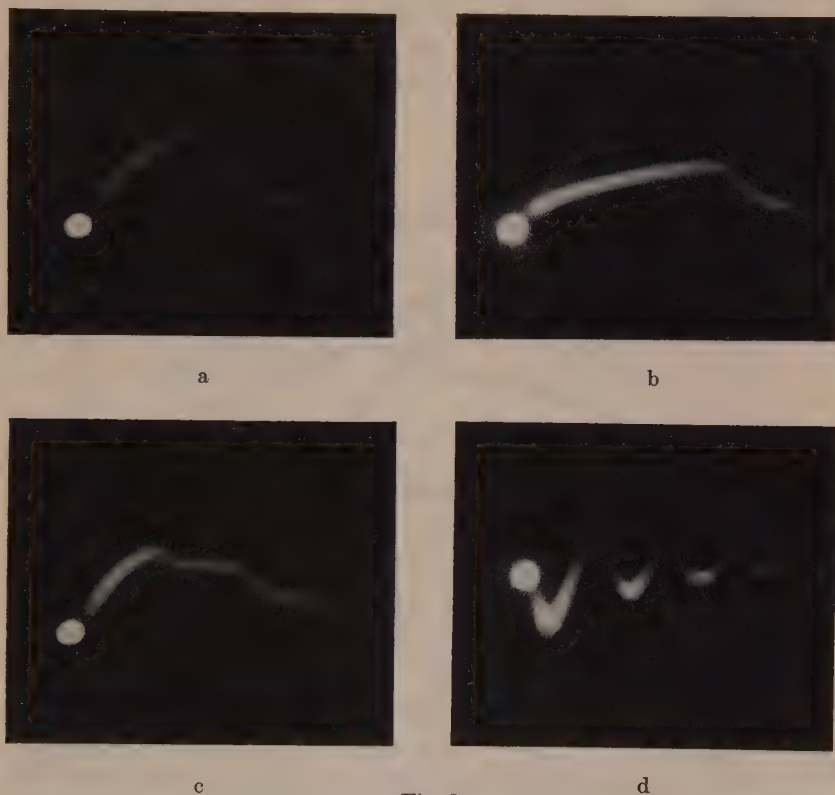


Fig. 2.

Experimentell bestimmte Impulsformen.

Zählrohrdaten: Spannung 1150 Volt, 18,2 Tor  $C_2H_5OH$ , 61,8 Tor Argon, Drahtdurchmesser 0,15 mm, Kathodendurchmesser 18 mm, Drahtlänge 17 cm.

- a) In der Mitte eingestrahlt; b) Am Rande eingestrahlt; c)  $1/3$  eingestrahlt;  
d) Eichkurve für Zeitablenkung.

zeit  $\vartheta$  des Stromes bis zum maximalen Wert lässt sich direkt die Fortpflanzungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches angeben:

$$v = \frac{d}{\vartheta}.$$

$d$  bezeichnet die vom Ionenschlauch durchlaufene Strecke. Für den Fall der Einstrahlung in der Mitte ist  $d = l/2$  ( $l$  = Zählrohr-

länge = 17 cm) und  $\vartheta$  wird  $6,8 \cdot 10^{-7}$  sec. Im Beispiel von Fig. 3a erhalten wir  $v = 12,5 \cdot 10^6$  cm/sec in Übereinstimmung mit den  $v$ -Werten aus den beiden anderen Kurven, die bei der gleichen Zählrohrfüllung und Zählrohrspannung aufgenommen wurden. Die

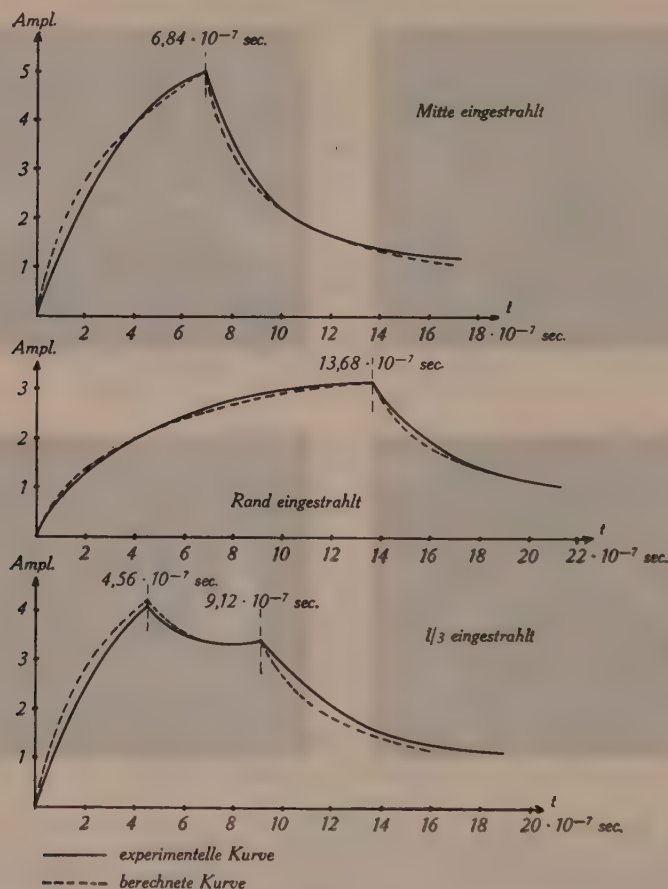


Fig. 3.

Vergleich zwischen experimentell bestimmter und berechneter Impulsform. Zählrohrdaten wie bei Fig. 2.

Ergebnisse stimmen ebenfalls überein mit den  $v$ -Werten, die mit dem Blendenzählrohr erhalten wurden<sup>1)</sup>.

In Fig. 3 sind die theoretisch berechneten Kurven für Einstrahlung in der Mitte, am Rande und  $l/3$  verglichen mit den

<sup>1)</sup> P. HUBER, F. ALDER und E. BALDINGER, *Helv. Phys. Acta* XIX, ... (1946).

experimentell aufgenommenen. Zum direkten Vergleich sind in der theoretischen Berechnung drei Konstanten zu bestimmen. Sie wurden durch Anschluss an die Messkurve der Fig. 3a erhalten, indem die Spitzen der beiden Kurven in Übereinstimmung und die zeitliche Ableitung des Stromanstieges an zwei Stellen zur Deckung gebracht wurden. Mit diesen Werten sind die berechneten Kurven in Fig. 3 gestrichelt eingezeichnet. Die Übereinstimmung kann als sehr gut bezeichnet werden.

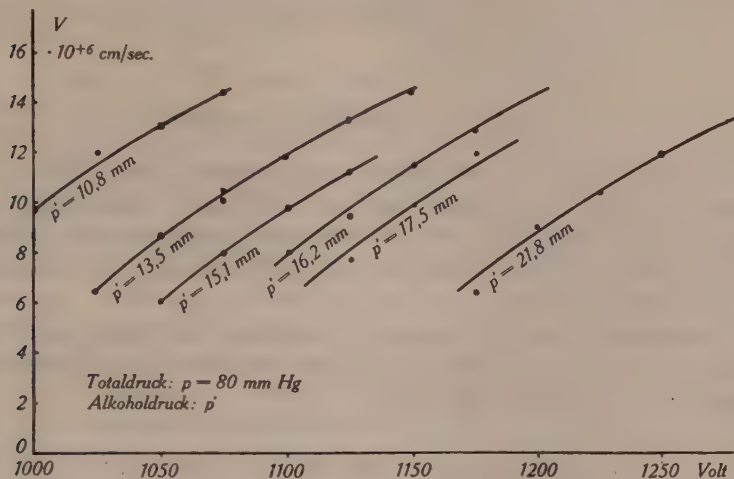


Fig. 4.

Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches in Abhängigkeit von Zählrohrspannung und Alkoholdruck.

Mit der Methode der Impulsform ist es einfach, die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches in Abhängigkeit von der Zählrohrspannung und vom Partialdruck des Alkohols ( $\text{C}_2\text{H}_5\text{OH}$ ) zu messen. Die Messergebnisse sind in Fig. 4 zusammengefasst.

### Der Multiplier als Zähler für Elementarpartikel

von K. P. MEYER, Universität Zürich.

1. Bisher haben BAY<sup>1)</sup>, ALLEN<sup>2)</sup>, sowie EISENSTEIN und GINGRICH<sup>3)</sup> den Sekundär-Elektronenvervielfacher (Multiplier)

<sup>1)</sup> Z. BAY, Nature **141**, 284, 1011 (1938). Z. S. f. Physik **117**, 227 (1940/41); Rev. of Sc. Instr. **12**, 127 (1941).

<sup>2)</sup> J. S. ALLEN, Phys. Rev. **55**, 966 (1939); **59**, 110 (1941); Rev. of Sc. Instr. **12**, 484 (1941).

<sup>3)</sup> A. EISENSTEIN und N. S. GINGRICH, Rev. of Sc. Instr. **12**, 582 (1941).



zur Zählung von Elementarpartikeln verwendet (Photonen, Elektronen, schwere Teilchen). Obwohl bereits BAY l. c. erkannte, dass die Überlegenheit des Multipliers über das GEIGER-MÜLLERSche Zählrohr (in der Folge als G. M.-Zählrohr bezeichnet) in erster Linie<sup>1)</sup> in seinem höheren Auflösungsvermögen besteht, wurden diese Möglichkeiten des Multipliers bisher experimentell nie realisiert. Ein möglichst hohes Auflösungsvermögen experimentell zu verwirklichen, ist das Ziel unserer im Gang befindlichen Versuche.

2. Zur Abschätzung der Möglichkeiten diene folgender Vergleich mit dem G. M.-Zählrohr:

#### A. Maximale auflösbare Stosszahl.

*G. M.-Zählrohr:*  $5 \cdot 10^4$  Stösse/sec. Hierbei muss aber nach SIMPSON<sup>2)</sup> die „Dead time“ von ca.  $10^{-4}$  sec<sup>3)</sup> durch Umpolen des Zählrohrs nach jedem Stoss besonders herabgesetzt werden. Bei der üblichen Verwendung des G. M.-Zählers ist die maximale Stosszahl nur ca.  $10^4$ /sec.

*Multiplikator:* Nach ZWORYKIN<sup>4)</sup> verstärkt der Multiplikator Frequenzen von  $10^8$  Hz noch unverzerrt, die maximale auflösbare Stosszahl wäre daher  $\geq 10^8$ /sec.

#### B. Auflösungsvermögen für Koinzidenzen.

*G. M.-Zählrohr:*  $10^{-7}$  sec nach BRADT und SCHERRER<sup>5)</sup>.

*Multiplikator:* Nach WANG<sup>6)</sup> ist die zeitliche Verzögerung der Sekundär-Elektronenemission, oder auf jeden Fall die zeitliche Schwankung dieser Verzögerung  $\ll 2,5 \cdot 10^{-10}$  sec. Es ist daher nicht übertrieben zu erwarten, dass der Multiplikator an sich Koinzidenzen bis zu ca.  $10^{-10}$  sec auflösen kann. Die Frage, ob es gelingt, auch das Auflösungsvermögen der übrigen Versuchsanordnung so weit zu treiben, ist damit noch nicht beantwortet.

---

<sup>1)</sup> Für den Nachweis von Lichtquanten bietet der Multiplikator ferner den grossen Vorteil, dass hochempfindliche Photokathoden verwendet werden können, die nicht mehr wie beim G. M.-Zählrohr dauernden Gasentladungen ausgesetzt sind, sondern sich im Hochvakuum befinden. Zuzufolge höherer Quantenausbeute und grösseren zulässigen Stosszahlen bietet sich die Möglichkeit, das Koinzidenzmessverfahren auf Prozesse auszudehnen, an denen Lichtquanten beteiligt sind.

<sup>2)</sup> J. A. SIMPSON jr., Phys. Rev. **66**, 39 (1944).

<sup>3)</sup> H. G. STEVER, Phys. Rev. **61**, 38 (1942).

<sup>4)</sup> V. K. ZWORYKIN, G. A. MORTON, L. MALTER, Proc. J. R. E. **24**, 351 (1936).

<sup>5)</sup> H. BRADT und P. SCHERRER, H. P. A. **16**, 251 (1943).

<sup>6)</sup> C. C. WANG, Phys. Rev. **68**, 284 (1945).

3. Versuchsanordnung: Für unsere Versuche steht ein elektrostatisch fokussierter Multiplier mit 13 Vervielfachungsstufen zur Verfügung<sup>1)</sup>. Die Gesamtvervielfachung beträgt ca.  $10^8$ . Die Vervielfachungselektroden bestehen aus einer Ag-Mg-Legierung. Ferner ist eine Photokathode aus einer Caesium-Antimonlegierung eingebaut. Um die bei Zimmertemperatur bereits störende thermische Elektronenemission dieser Cs-Legierung auszuschalten, wird der Multiplier mit flüssiger Luft gekühlt. Die Stösse wurden bis jetzt mit Hilfe eines Kathodenstrahloszillographen nachgewiesen und photographisch registriert.

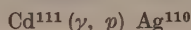
4. Resultate: Sichtbares Licht liefert für jedes primäre Photoelektron am Ausgang des Multipliers je nach Betriebsbedingungen (Spannung pro Stufe, Kühltemperatur) mittlere Elektronenpakete von ca.  $2,5$ — $25 \cdot 10^6$  Elektronen, welche Spannungsstösse von ca.  $7,5$  bis  $75$  Millivolt verursachen. Der Anodenstrom des Multipliers wird praktisch nur durch die Stösse verursacht ( $400$  Stösse/sec verursachen z. B. einen mittleren Strom von  $3 \cdot 10^{-10}$  Amp.). Ohne Einstrahlung von Photonen sinkt der Strom auf ca.  $10^{-12}$  Amp. ab. Dieser Reststrom ist im wesentlichen durch die Nullstösse bedingt (je nach Betriebsbedingungen  $0,3$ — $1$  Stoss/sec, ohne Pb-Mantel). Die Nulllinie auf dem Oszillographenschirm ist daher abgesehen von den Stössen ohne jede beobachtbare Störung. Die Stossdauer (Zeit bis zur Erreichung der vollen Stossamplitude) ergab sich aus den Oszillogrammen zu ca.  $10^{-6}$  sec. *Es konnten bereits Stosszahlen von ca.  $10^6$ /sec aufgelöst und im Oszillogramm registriert werden.* Damit ist aber noch gar nichts über die obere Grenze des Auflösungsvermögens des Multipliers gesagt, weil mit einem Megahertz die obere Grenze des Frequenzbandes erreicht ist, welches vom eingebauten Röhrenverstärker unseres Oszillographen verstärkt wird. Die Versuche werden mit Verstärkern fortgesetzt, deren obere Frequenzbandgrenze höher liegt.

$\gamma$ -Strahlen liefern Stossamplituden, die *ceteris paribus* etwa 10mal grösser sind als bei Einstrahlung von Lichtquanten.  $\gamma$ -Quanten erzeugen eben mehr als nur ein Primärelektron im Multiplier (dass die Nullstösse im Mittel auch viel grösser sind als die von Lichtquanten verursachten Stösse, zeigt, dass ein wesentlicher Teil der Nullstösse durch die Höhenstrahlung und radioaktive Umgebungsstrahlung bedingt ist). Die Stossamplituden am Multiplierausgang können bei geeigneten Betriebsbedingungen bis zu  $1$  Volt

<sup>1)</sup> Dieser Multiplier wurde im Inst. f. techn. Physik an der E.T.H. von Herrn N. SCHAETTI gebaut. Für den Bau dieser ganz hervorragenden Röhre möchte ich hier Herrn Prof. FISCHER und Herrn SCHAETTI meinen Dank abstatten.

gehen. Bei Abschaltung der Photokathode liessen sich  $\gamma$ -Quanten auch bei Zimmertemperatur zählen. Die Stossamplituden sind dabei *ceteris paribus* etwa um den Faktor 10 grösser als bei Kühlung mit flüssiger Luft. Das entspricht einer Zunahme des Sekundärelektronen-Multiplikationsfaktors um  $^{12}\sqrt{10} = \text{ca. } 1,2$ .

### Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons an Cadmium:



von O. HIRZEL und H. WÄFFLER, E.T.H. Zürich.

Mit der beim Einfang schneller Protonen in Lithium erzeugten harten Gammastrahlung ( $h\nu \sim 17 \text{ MeV}$ ) lassen sich bei praktisch allen Kernen Umwandlungen durchführen. In den meisten Fällen besteht diese Umwandlung in der Abtrennung eines Neutrons aus dem betreffenden Kern ( $(\gamma, n)$ -Prozess). Auch die Emission eines Protons ist grundsätzlich möglich ( $(\gamma, p)$ -Prozess), doch konnte eine solche bis jetzt nur an Magnesium:  $\text{Mg}^{26}(\gamma, p) \text{Na}^{25}$  nachgewiesen werden<sup>1)</sup>. Es ist zu erwarten, dass der Reaktionstyp  $(\gamma, p)$  viel seltener auftritt als der  $(\gamma, n)$ -Prozess, vor allem bei schweren Kernen ( $Z \approx 50$ ), weil das Proton durch den Potentialwall des Coulombfeldes am Austritt behindert wird, und zwar um so stärker, je grösser die Kernladung ist.

Wir haben mit einer intensiven Quelle von Lithium- $\gamma$ -Strahlen ( $\approx 10^9$  Quanten/sec.) verschiedene Elemente (Si, Cr, Ti, Cd, Sn, Pb) auf einen  $(\gamma, p)$ -Prozess hin untersucht. Der Nachweis der Reaktion erfolgte bei allen diesen Elementen auf Grund der Radioaktivität des Restkerns. Es konnte zwar in allen Fällen ein Effekt beobachtet werden, doch die induzierte Aktivität war im allgemeinen zu schwach, um sie mit Sicherheit einem  $(\gamma, p)$ -Prozess zuzuordnen zu können. Einzig Cadmium zeigte nach 1-minütiger Bestrahlung eine gut messbare 24 sec-Aktivität. Um festzustellen, ob dieser 24-sec-Körper mit dem bekannten radioaktiven Silberisotop  $\text{Ag}^{110}$  ( $T = 24,2 \pm 0,5 \text{ sec}$ ,  $E_{\beta \text{ max}} = 2,6 \text{ MeV}$ ) identisch ist, wurden folgende Versuche durchgeführt:

1. Die Halbwertszeit der mit  $\gamma$ -Strahlen in Cadmium induzierten Aktivität wurde in der gleichen geometrischen Anordnung mit der Halbwertszeit der in Silber mit langsamen Neutronen induzierten Aktivität des  $\text{Ag}^{110}$  [ $\text{Ag}^{109}(n, \gamma) \text{Ag}^{110}$ ] verglichen. Für Cadmium fanden wir  $T = 24,0 \pm 1,0 \text{ sec}$ , für Silber  $T = 24,5 \pm 0,3 \text{ sec}$ .

<sup>1)</sup> O. HUBER, O. LIENHARD, P. SCHERRER und H. WÄFFLER, H.P.A. 17, 139 (1944).

2. Zum Vergleich der von den beiden radioaktiven Strahlern emittierten Betaspektren wurden ihre Absorptionskurven in Silber aufgenommen. Diese Kurven stimmen völlig überein. Auf Grund dieser Versuche kann die Identität der beiden radioaktiven Körper als gesichert gelten.

Bei der Beschiessung von Lithium mit Protonen entstehen infolge der natürlichen Deuteriumbeimengung des Wasserstoffs auch immer schnelle Neutronen. Es musste deshalb noch geprüft werden, ob das radioaktive Isotop  $\text{Ag}^{110}$  tatsächlich im Prozess  $\text{Cd}^{111} (\gamma, p) \text{Ag}^{110}$  entsteht, oder ob etwa die Neutronenreaktion  $\text{Cd}^{110} (n, p) \text{Ag}^{110}$  vorliegt. Der Beweis, dass es sich tatsächlich um den  $(\gamma, p)$ -Prozess handelt, konnte mit Hilfe der Anregungsfunktion der 24-sec-Aktivität erbracht werden. Diese folgt zwischen 440 und 480 KeV Protonenenergie genau dem Resonanzanstieg der Lithium-Gamma-Strahlung und nicht dem monotonen Anstieg der Li+D-Reaktion.

Experimentell findet man für den Wirkungsquerschnitt des  $(\gamma, n)$ -Prozesses an  $\text{Ag}^{107}$ ,  $\text{Ag}^{109}$ ,  $\text{Cd}^{116}$  und  $\text{Sn}^{124}$  innerhalb der Fehlergrenzen denselben Wert:  $\sigma (\gamma, n) \sim 3 \cdot 10^{-26} \text{ cm}^2$ .

Man kann deshalb mit grosser Wahrscheinlichkeit annehmen, dass auch  $\text{Cd}^{111}$  etwa den gleichen Wirkungsquerschnitt für den  $(\gamma, n)$ -Prozess aufweist. Unter dieser Annahme lässt sich aus der experimentell bestimmten Ausbeute des Prozesses  $\text{Cd}^{111} (\gamma, p) \text{Ag}^{110}$  das *Verhältnis* der Wirkungsquerschnitte:  $\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, n)$  berechnen. Man findet für dieses Verhältnis den Wert:

$$\frac{\sigma(\gamma, p)}{\sigma(\gamma, n)} = \frac{1}{35}.$$

Dieses experimentelle Wirkungsquerschnittsverhältnis kann man mit dem theoretischen Wert, der sich aus einer Arbeit von WEISSKOPF und EWING<sup>1)</sup> entnehmen lässt, vergleichen. Die genannten Autoren haben auf Grund der von Bohr entwickelten Vorstellungen<sup>2)</sup> die Wirkungsquerschnitte für Umwandlungen der schweren Kerne berechnet. Für die konkurrenzierenden Prozesse  $(\gamma, p)$  und  $(\gamma, n)$  wird das *Verhältnis* ihrer Wirkungsquerschnitte gleich dem Verhältnis der Emissionswahrscheinlichkeiten für die beiden Teilchen Proton, bzw. Neutron. Dieses Verhältnis lässt sich der Arbeit von WEISSKOPF und EWING entnehmen und ist in Fig. 1 in Abhängigkeit von der Maximalenergie  $E_{\text{max}}$  der austretenden Teilchen dargestellt.  $E_{\text{max}}$  ergibt sich als Differenz zwischen der Energie des

<sup>1)</sup> V. F. WEISSKOPF und D. H. EWING, Phys. Rev. **57**, 472 (1940).

<sup>2)</sup> N. BOHR, Nature **137**, 344 (1936).



einfallenden  $\gamma$ -Quants ( $h\nu \sim 17$  MeV) und der Bindungsenergie der austretenden Teilchen. Da der exakte Wert der Bindungsenergie zur Zeit nicht bekannt ist, so können ihre approximativen Grenzwerte — 8 resp. 10 MeV — betrachtet werden. Man erkennt, dass das theoretische Wirkungsquerschnittsverhältnis bestenfalls den Wert

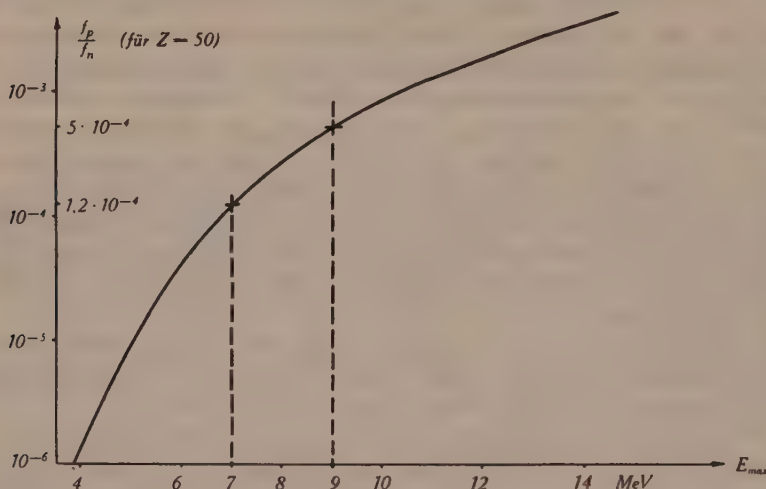


Fig. 1.

Verhältnis der Austrittswahrscheinlichkeiten von Protonen und Neutronen.

$5 \cdot 10^{-4}$  erreicht, also rund 60mal kleiner ist als das experimentelle. Dieses Ergebnis deutet unseres Erachtens darauf hin, dass im Falle der Kernumwandlungen durch  $\gamma$ -Strahlen die BOHRschen Vorstellungen über den Mechanismus des Umwandlungsprozesses einer Modifikation bedürfen.

### Über die beim Zerfall des $K^{40}$ emittierte $\gamma$ -Strahlung

VON O. HIRZEL UND H. WÄFFLER, E.T.H. Zürich.

Nach Absorptionsmessungen von GRAY und TARRANT<sup>1)</sup> hat die beim radioaktiven Zerfall des  $K^{40}$  emittierte  $\gamma$ -Strahlung eine Quantenenergie von 2 MeV. Die obere Grenze des  $\beta$ -Spektrums von  $K^{40}$  beträgt aber nur 1,3 MeV<sup>2)</sup>, so dass sich diese  $\gamma$ -Strahlung nur schwer in das Zerfallschema  $K^{40} \rightarrow Ca^{40}$  einordnen lässt.

Da man in dem genannten Energiebereich von einer Absorptionsmessung keine sehr genauen Resultate erwarten kann, so

<sup>1)</sup> L. H. GRAY und G. T. P. TARRANT, Proc. Roy. Soc. **143**, 681 (1933).

<sup>2)</sup> W. J. HENDERSON, Phys. Rev. **55**, 238A (1939).

führten wir eine Neubestimmung der Quantenenergie nach dem BORNESchen Koinzidenzverfahren durch. Die Messungen ergaben den Wert

$$h\nu = 1,54 \pm 0,1 \text{ MeV.}$$

Dieser Energiewert rückt nun sehr nahe an die Grenzenergie des  $\beta^-$ -Spektrums von  $K^{40}$ . Es schien uns deshalb wünschenswert, auch die  $\beta$ -Energie nochmals möglichst genau zu bestimmen. Infolge der schwachen Aktivität des Kaliums kommt hierfür nur eine Absorptionsmessung in Frage. Wir haben die Absorptionskurve der  $K^{40}$ - $\beta$ -Strahlung in Aluminium aufgenommen und mit den Absorptionskurven von  $Na^{24}$  und  $P^{32}$  verglichen. Dabei zeigte es sich, dass die Absorptionskurven von  $Na^{24}$  und  $K^{40}$  praktisch identisch sind. Man kann somit auch für die oberen Grenzen der beiden  $\beta$ -Spektren den gleichen Wert annehmen. Die Grenzenergie von  $Na^{24}$  ist gut bekannt<sup>3)</sup>. Sie beträgt

$$E_{\beta \text{ max}}(Na^{24}) = 1,41 \pm 0,02 \text{ MeV} \cong E_{\beta \text{ max}}(K^{40})$$

Damit ist sichergestellt, dass die Quantenenergie der Gammastrahlung von  $K^{40}$  grösser ist, als die Grenzenergie des  $\beta^-$ -Spektrums.

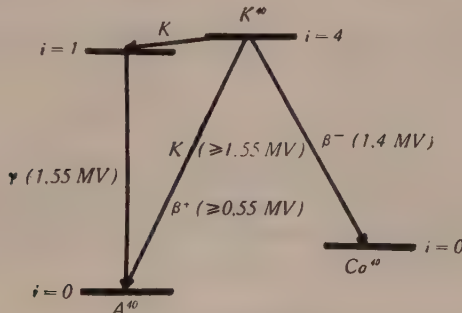


Fig. 1.

Vermutliches Zerfallsschema von  $K^{40}$ .

Auf Grund dieser Tatsache erscheint es sehr unwahrscheinlich, dass die  $\gamma$ -Strahlung zum Übergang  $K^{40} \rightarrow Ca^{40}$  gehört; vielmehr hängt sie höchstwahrscheinlich mit dem Zerfall  $K^{40} \rightarrow A^{40}$ , der praktisch nur unter K-Einfang erfolgt, zusammen. Auf Grund der vorliegenden Messungen möchten wir das in Fig. 1 dargestellte Niveauschema für den Zerfall des  $K^{40}$  vorschlagen.

<sup>3)</sup> K. SIEGBAHN, Ark. f. Math. Astr. Phys. **30** (1944).

### Die Silberisomere $\text{Ag}^{*107}$ und $\text{Ag}^{*109}$

VON H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK,  
P. SCHERRER und R. STEFFEN E.T.H. Zürich.

Die Untersuchung der Silber-Isomere  $\text{Ag}^{*107}$  und  $\text{Ag}^{*109}$ , über die wir schon früher berichtet hatten (BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>1</sup>), wurde fortgeführt. Insbesondere wurde nun die Wahrscheinlichkeit der Konversion der von den beiden Isomeren beim Übergang in den Grundzustand emittierten  $\gamma$ -Strahlung in den verschiedenen Elektronenschalen genauer untersucht. Die beiden Silber-Isomere treten auf als Folgeprodukte des  $6,7 \text{ h Cd}^{107, 109}$  und des langlebigen  $\text{Cd}^{107, 109}$ , dessen Halbwertszeit wir, den HELMHOLZschen Wert<sup>2</sup>) von  $158 \text{ d}$  korrigierend, zu  $330 \text{ d}$  bestimmten. Für die  $93,5\text{-keV}$ -Strahlung des als Folgeprodukt des  $6,7 \text{ h Cd}^{107, 109}$  auftretenden  $\text{Ag}_I^*$  der Halbwertszeit  $(44,3 \pm 0,2) \text{ sec}$  ist die Intensität der  $L$ -Konversionslinie  $1,12$ -mal, die Intensität der  $(M + N)$ -Konversionslinien  $0,19$ mal grösser als die Intensität der  $K$ -Konversionslinie:

$$(N_L/N_K)_{\text{Ag}_I^*} = 1,12 \pm 0,05; (N_{M+N}/N_K)_{\text{Ag}_I^*} = 0,19 \pm 0,02.$$

Für die  $88,4\text{-keV}$ -Strahlung des als Folgeprodukt des  $330 \text{ d Cd}^{107, 109}$  auftretenden  $\text{Ag}_{II}^*$  der Halbwertszeit  $(39,2 \pm 0,3) \text{ sec}$  ergeben sich ganz ähnliche Werte; nur der Wert  $N_L/N_K$  scheint etwas kleiner zu sein:

$$(N_L/N_K)_{\text{Ag}_{II}^*} = 1,00 \pm 0,05.$$

Der nach HEBB und NELSON<sup>3</sup>) unter der dort angegebenen Berücksichtigung der Abschirmung der Kernladung berechnete Wert der relativen Wahrscheinlichkeit von  $L$ - und  $K$ -Konversion beträgt für elektrische  $2^4$ -Polstrahlung

$$(N_L/N_K)_{\text{el. } 2^4\text{-Pol.}} = 1,7.$$

Die Anregungsenergie-Lebensdauer-Relation liesse für die Silber-Isomere bei gleicher Parität von metastabilem Zustand und Grundzustand ausser dem Übergang durch Emission elektrischer  $2^4$ -Polstrahlung für  $\Delta J = 4$  noch den Übergang durch Emission von magnetischer  $2^3$ -Polstrahlung plus elektrischer  $2^4$ -Polstrahlung vergleichbarer Intensität für  $\Delta J = 3$  zu. Für reine magnetische

<sup>1</sup>) H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **18**, 256 (1945).

<sup>2</sup>) A. C. HELMHOLZ, *Phys. Rev.* **60**, 160 (1941).

<sup>3</sup>) M. H. HEBB und E. NELSON, *Phys. Rev.* **58**, 486 (1940).

$2^3$ -Polstrahlung ergäbe sich nach HEBB und NELSON ein gegenüber dem experimentellen viel zu kleiner Wert

$$(N_L/N_K)_{\text{magn. } 2^3\text{-Pol.}} = 0,24.$$

Die totale Konversionswahrscheinlichkeit  $N^e/N^a$  der 93,5-keV-Strahlung des 44,3 sec  $\text{Ag}_I^*$  wurde durch Vergleich der Intensität der unkonvertierten 93,5-keV- $\gamma$ -Strahlung mit der bekannten harten  $\gamma$ -Strahlung des 6,7 h Cd (BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>1)</sup> zu

$$(N^e/N^a)_{\text{Ag}_I^*} = 16,$$

die totale Konversionswahrscheinlichkeit der 88,4-keV-Strahlung des 39,2 sec  $\text{Ag}_{II}^*$  anknüpfend daran zu

$$(N^e/N^a)_{\text{Ag}_{II}^*} = 19$$

bestimmt. Diese Werte sind erheblich kleiner als der nach DANCOFF und MORRISON<sup>2</sup> für elektrische  $2^4$ -Polstrahlung berechnete Wert. Die experimentellen Daten könnten als Prüfstein für eine genauere theoretische Berechnung der Konversionswahrscheinlichkeit für elektrische  $2^4$ -Polstrahlung bei mittelschweren Elementen ( $Z=47$ ) dienen.

Der geringe Unterschied in den Eigenschaften der metastabilen Zustände der beiden stabilen Silberkerne  $\text{Ag}^{107}$  ( $J = \frac{1}{2} \hbar$ ,  $\mu = -0,10 \mu_K$ ) und  $\text{Ag}^{109}$  ( $J = \frac{1}{2} \hbar$ ,  $\mu = -0,19 \mu_K$ ) könnte eventuell für ein detaillierteres Verständnis der Kernisomerie von Interesse sein. In dieser Hinsicht ist insbesondere zu bemerken, dass, entgegen der den einfachen Modellen entsprechenden Relation, der metastabile Zustand höherer Energie die grössere Lebensdauer besitzt.

### Die duale radioaktive Umwandlung des $\text{Cu}^{64}$

VON H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK,  
P. SCHERRER und R. STEFFEN, E.T.H. Zürich.

Der Vergleich der relativen Wahrscheinlichkeit von Positronenemission und K-Einfang beim  $\text{Cu}^{61}$  und  $\text{Cu}^{64}$ , den wir in einer früheren Untersuchung<sup>3)</sup> durchführten, hatte eine Diskrepanz von

<sup>1)</sup> H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **18**, 351 (1945).

<sup>2)</sup> S. M. DANCOFF und P. MORRISON, *Phys. Rev.* **55**, 122 (1939).

<sup>3)</sup> H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **18**, 252 (1945).



30% zwischen dem experimentell bestimmten und dem theoretisch berechneten Wert ergeben.

Diese Abweichung veranlasste uns die Umwandlung des  $\text{Cu}^{64}$ -Kernes eingehender zu untersuchen, um zu prüfen, ob beim  $\text{Cu}^{64}$  nicht doch ein komplizierteres Umwandlungsschema vorliegt, als auf Grund der bisherigen Messungen anzunehmen war.

Das  $\text{Cu}^{64}$  der Halbwertszeit 12,8 h, das wir durch die Bestrahlung von Nickel mit 7 MeV Protonen des Cyclotrons erzeugten, wandelt sich auf duale Weise, um einerseits durch  $\beta^-$ -Emission ( $E_{\text{max}} = 0,578 \pm 0,003 \text{ MeV}^1$ ) in das  $\text{Zn}^{64}$ , anderseits durch  $\beta^+$ -Emission ( $E_{\text{max}} = 0,659 \pm 0,003 \text{ MeV}^1$ ) und K-Einfang in das  $\text{Ni}^{64}$ .

Für das Verhältnis der Wahrscheinlichkeit von Elektronen- und Positronenemission fanden wir durch Ausplanimetrieren der Spektren den Wert:

$$N^-/N^+ = 2,1.$$

Der bisher bekannte von VAN VOORHIS<sup>2)</sup> aus Wilsonkammermessungen bestimmte Wert war  $N^-/N^+ \sim 1,6$ . Das Verhältnis der Quadrate der in der FERMISCHEN Formel auftretenden Matrixelemente berechnet sich mit dem neuen Wert zu

$$|M^-/M^+|^2 = 0,47.$$

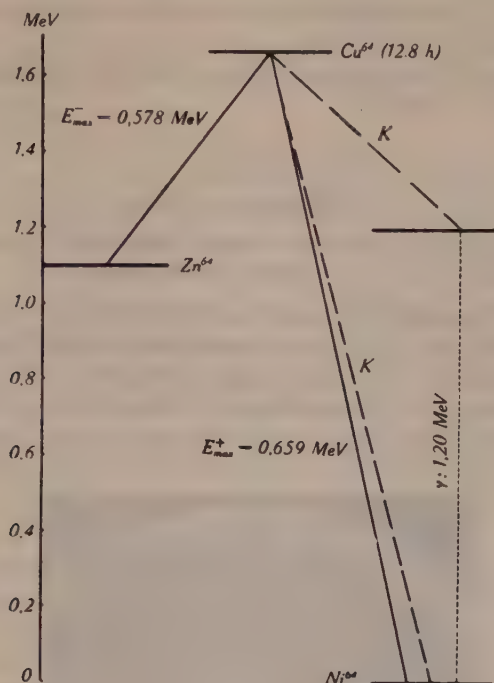
Von verschiedenen Autoren<sup>2)3)</sup> ist festgestellt worden, dass  $\text{Cu}^{64}$  neben der 0,51 MeV Annihilationsstrahlung keine intensive Kern- $\gamma$ -Strahlung emittiert. Um eine allfällige vorhandene schwache  $\gamma$ -Linie festzustellen, wurde mit der BOTHERSchen Koinzidenzmethode die Absorptionskurve und Reichweite der Comptonelektronen bestimmt. Diese Methode gestattet bekanntlich auch in Anwesenheit intensiver weicherer  $\gamma$ -Strahlung schwache härtere  $\gamma$ -Komponenten aufzufinden. Diese Messungen zeigen deutlich das Vorhandensein einer  $\gamma$ -Linie von  $(1,20 \pm 0,05) \text{ MeV}$ . Die Intensität der 1,2-MeV-Komponente fällt zeitlich mit der 12,8-h-Periode des  $\text{Cu}^{64}$  ab. Das Vorhandensein dieser Kern- $\gamma$ -Linie wurde auch durch Absorptionsmessungen (ausgeführt mit Bleifiltern bis zu 6 cm Dicke) festgestellt. Beide Messungen führten auf den selben Intensitätswert von  $(0,10 \pm 0,02) \gamma$ -Quanten pro Positron. Koinzidenzmessungen zeigen, dass diese Linie, wie es aus energetischen Gründen hervorgeht, mit dem K-Einfang gekoppelt ist.

<sup>1)</sup> A. W. TYLER, Phys. Rev. **56**, 125 (1939).

<sup>2)</sup> S. N. VAN VOORHIS, Phys. Rev. **50**, 895 (1936).

<sup>3)</sup> W. GENTNER und SEGRÈ, Phys. Rev. **55**, 814 (1939).

Wir haben also für die Umwandlung des  $\text{Cu}^{64}$  das folgende Schema:



Die eingangs angeführte Diskrepanz zwischen der experimentell bestimmten und der nach FERMI berechneten relativen Wahrscheinlichkeit von Positronenemission und  $K$ -Einfang beim  $\text{Cu}^{61}$  und  $\text{Cu}^{64}$  wird durch das genauere Umwandlungsschema nicht erklärt.

#### Umwandlungsschema des $\text{Zn}^{63}$

VON H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK,  
P. SCHERRER und R. STEFFEN, E.T.H. Zürich.

Die radioaktive Umwandlung des 38,3 Minuten- $\text{Zn}^{63}$  wurde untersucht und das zugehörige Umwandlungsschema aufgestellt.

Die Umwandlung erfolgt sowohl durch Emission von Positronen einer Maximalenergie von  $(2,36 \pm 0,02)$  MeV als auch durch Einfang von Hüllenelektronen. 88% aller Umwandlungen führen direkt, 8% über ein angeregtes Niveau von  $(0,96 \pm 0,01)$  MeV und 4% über ein Niveau von  $(1,9 \pm 0,1)$  MeV in den Grund-

zustand des Folgekernes  $\text{Cu}^{63}$ . Das gemessene Positronenspektrum lässt sich in drei Partialspektren mit FERMIVerteilung, welche den drei erlaubten Übergängen in die angeführten Niveaus des  $\text{Cu}^{63}$ -Kernes entsprechen, zerlegen.

Über diese Untersuchung wird demnächst ausführlich in den H.P.A. berichtet werden.

### K-Einfang des $\text{Fe}^{55}$

von H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK,  
P. SCHERRER und R. STEFFEN, E.T.H. Zürich.

Bei Deuteronenbestrahlung von Eisen wurde von LIVINGOOD und SEABORG<sup>1)</sup> das Auftreten einer langlebigen Aktivität, die sie dem Eisenisotop  $\text{Fe}^{55}$  zuordneten, beobachtet. Die Halbwertszeit dieses Isotops wurde von VAN VOORHIS<sup>2)</sup> zu ca. vier Jahren bestimmt. LIVINGOOD und SEABORG vermuteten, dass das  $\text{Fe}^{55}$



Fig. 1.

Wilsonkammeraufnahme der  $\text{Fe}^{55}$ -Strahlung.

<sup>1)</sup> J. J. LIVINGOOD und G. T. SEABORG, Phys. Rev. **55**, 1268 (1939).

<sup>2)</sup> S. N. VAN VOORHIS, Priv. Mitteil. an J. J. LIVINGOOD und G. T. SEABORG, Rev. mod. Physics **12**, 30 (1940).

durch K-Einfang oder Positronenemission in das stabile  $\text{Mn}^{55}$  übergeht.

Zur Herstellung der für die Untersuchung der  $\text{Fe}^{55}$ -Strahlung verwendeten Präparate wurde Mangan mit 7 MeV Protonen im Cyclotron bestrahlt, und das Eisen chemisch als Eisenazetat vom Mangan getrennt.

Durch Nachweis der K-Röntgenstrahlung des Mn wurde verifiziert, dass das  $\text{Fe}^{55}$  durch K-Einfang in Mn übergeht. Zählrohrmessungen mit Magnetfeld, wie auch Wilsonkammeraufnahmen, zeigten, dass bei der Umwandlung des  $\text{Fe}^{55}$  weder Positronen noch Primär-Elektronen emittiert werden.

Die weitere Untersuchung der  $\text{Fe}^{55}$ -Strahlung ergab, dass ausser der Mn-Röntgen-Strahlung nur noch eine äusserst schwache  $\gamma$ -Strahlung einer mittleren Energie von ca. 70 keV emittiert wird, deren Intensität etwa  $2 \cdot 10^{-5}$   $\gamma$ -Quanten pro Umwandlung beträgt. Das Verhältnis der Intensität dieser  $\gamma$ -Strahlung zur Intensität der Mn-K-Strahlung blieb während der Messdauer, die sich über mehr als ein halbes Jahr erstreckte, konstant, so dass die  $\gamma$ -Strahlung keiner Verunreinigung zuzuschreiben ist.

MORRISON und SCHIFF<sup>1)</sup> haben gezeigt, dass auch als Begleiterscheinung des K-Einfangs eine schwache  $\gamma$ -Strahlung mit kontinuierlichem Energiespektrum, entsprechend der Bremsstrahlung bei Elektronenemission, zu erwarten ist. Mit FERMI- oder GAMOW-TELLER-Kopplung erhalten sie für die Wahrscheinlichkeit, dass pro K-Umwandlungsprozess ein  $\gamma$ -Quant mit einer Energie zwischen  $E$  und  $E + dE$  emittiert wird:

$$w(E) dE = \frac{\alpha}{\pi} \left( \frac{W_0}{mc^2} \right)^2 \left( 1 - \frac{E}{W_0} \right)^2 \frac{E}{W_0} dE \quad (1)$$

$W_0$  ist die bei der Umwandlung freiwerdende Energie. Die totale Anzahl der pro K-Umwandlungsprozess emittierten  $\gamma$ -Quanten ist:

$$\int_0^{W_0} w(E) dE = \frac{\alpha}{12\pi} \left( \frac{W_0}{mc^2} \right)^2 \quad (2)$$

Für andere Kopplungsansätze und verbotene Übergänge ist die Intensität der  $\gamma$ -Strahlung von der gleichen Grössenordnung.

Aus dem experimentell bestimmten Wert von  $2 \cdot 10^{-5}$ - $\gamma$ -Quanten pro Umwandlung berechnet sich  $W_0$  nach Formel (2) zu ca. 0,15

<sup>1)</sup> P. MORRISON und L. I. SCHIFF, Phys. Rev. **58**, 24 (1940).



MeV. Mit diesem Wert von  $W_0$  kann die Absorption der kontinuierlichen  $\gamma$ -Strahlung des durch Gleichung (1) gegebenen Energiespektrums berechnet werden.

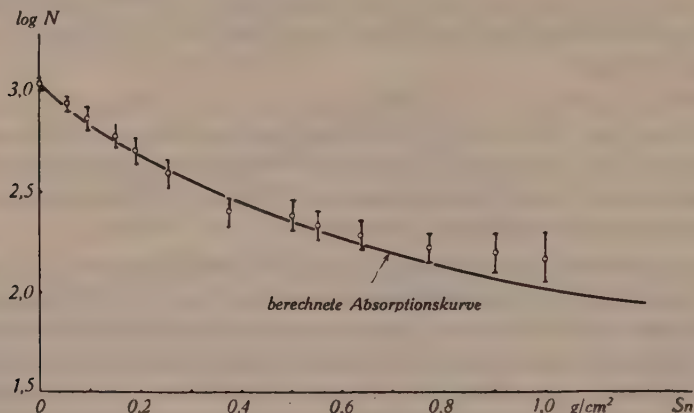


Fig. 2.

Absorption der kontinuierlichen  $\gamma$ -Strahlung des  $\text{Fe}^{55}$  in Sn.

Die Messung der Absorption der  $\text{Fe}^{55}$ - $\gamma$ -Strahlung in Blei-, Platin- und Zinn-Folien ist, wie Fig. 2 zeigt, mit den berechneten Absorptionskurven innerhalb der Fehlergrenzen in Übereinstimmung.

### A propos de la loi de Hooke

par A. JAQUEROD, Neuchâtel.

La loi de HOOKE est à la base de la théorie de l'élasticité. On est obligé de la considérer comme valable alors même qu'on sait que les corps élastiques présentent des écarts à cette loi, même lorsqu'on reste dans le domaine des déformations petites, où la plasticité, le fluage, n'existent pratiquement pas. On la considère en tout cas comme une loi limite.

Ces écarts, qu'il serait très intéressant de connaître, sont très difficiles à déterminer expérimentalement. Les méthodes statiques sont impuissantes. Seules les méthodes dynamiques, utilisant des oscillations, permettent d'espérer une précision suffisante atteignant le cent millième. L'équation du mouvement, dans le cas où la loi de HOOKE n'est pas rigoureuse, est de la forme  $\frac{d^2 x}{dt^2} = -F(x)$ , où  $F(x)$  pourra empiriquement être considérée comme un polynôme:  $F(x) = ax + bx^2 + cx^3 + \dots$ . La période sera alors

fonction de l'amplitude  $x_0$ , et calculable si l'on connaît  $F(x)$  (par une fonction elliptique si le développement s'arrête au terme du troisième degré). Inversement la détermination de la période permettra d'atteindre  $F(x)$ . On pourra admettre un module,  $E$  ou  $G$ , fonction de la contrainte donc de  $x$ .

Malheureusement les constantes  $b, c \dots$  sont généralement très petites et il faut connaître la période avec une précision considérable, et cela jusqu'à de grandes amplitudes. Or, cette précision est impossible à atteindre avec une exactitude suffisante par suite de l'amortissement.

On peut tourner la difficulté par la méthode générale suivante. Considérons par exemple un *pendule de torsion double*, c'est-à-dire dont l'équipage mobile est suspendu à un fil métallique de quelques dixième de mm de diamètre, un fil identique et de même longueur étant fixé sous cet équipage et d'autre part à une pince pouvant tourner dans un cône, et qui peut être immobilisée. Le tout est tendu par un poids constant. On observe la durée d'oscillation pour de très petites amplitudes (inférieures à un degré), le fil étant sans torsion pour la position d'équilibre. Par une méthode de coïncidences on détermine la période  $T_0$  en quarante à cinquante minutes, à la précision du cent millième, ce qui est facile. Puis on tord les deux fils d'un angle  $\Theta_1$  en tournant la pince d'un angle  $2 \Theta_1$  et on observe la nouvelle période  $= T_1$  pour de très petites oscillations autour de la nouvelle position d'équilibre, les fils étant soumis à une contrainte connue. On répète l'expérience pour des torsions  $\Theta_2, \Theta_3, \dots$ . Si le module était constant (loi de Hooke) on aurait  $T_0 = T_1 = T_2 = \dots$ . Le résultat expérimental est tout autre.

Avec l'acier de cordes à piano recuit, de 0,5 mm de diamètre et d'un mètre de longueur, le module varie de deux à trois cent millièmes pour une torsion de  $2 \pi$ , déjà considérable. Avec un fil du même acier de 0,3 mm on a pu poursuivre les déterminations jusqu'à une contrainte correspondant à une torsion de  $8 \pi$ . Le module diminue alors de façon à peu près parabolique, la tangente à l'origine de la courbe  $G = F(\Theta)$  étant horizontale, donc la loi de Hooke valable, mais comme loi limite seulement, c'est-à-dire que  $\left(\frac{dG}{d\Theta}\right) = 0$  pour  $\Theta = 0$ .

Avec un *acier au nickel* spécial, de ceux qu'on utilise pour compenser en chronométrie l'influence de la température, le résultat est bien différent. La période diminue tout d'abord avec la torsion, passe par un minimum, puis augmente de plus en plus vite. On peut donc considérer une variation du module de torsion, en sens

inverse, et d'importance double, qui se représente très bien par la formule

$G = G_0 (1 + a\Theta - b\Theta^2)$ , avec  $a = 0,00202$  et  $b = 0,00053$ , valable jusqu'à  $\Theta = 6 \pi$ .

Les écarts, comme on le voit, sont grands, et la loi de HOOKE n'est même pas valable pour des oscillations infiniment petites puisque  $\frac{dG}{d\Theta}$  ne s'annule pas avec  $\Theta$ . Ce résultat est très probablement en relation avec le ferromagnétisme de l'alliage, et avec ses autres anomalies élastiques.

On observe en outre une dissymétrie suivant que le fil est tordu à droite ou à gauche. La variation du module de COULOMB avec la torsion a bien la même allure, mais avec des constantes un peu différentes. Ce fait est dû au passage à la filière qui donne toujours au fil une structure, donc une symétrie, hélicoïdale.

Il serait très intéressant d'étudier de la même manière divers métaux purs, après des traitements thermiques et mécaniques variés. Malheureusement très peu soutiendraient des contraintes appréciables sans présenter de l'écroutissage, de la réactivité, etc., ce qui rendrait les observations impossibles.

Enfin, on se propose d'étudier de façon semblable l'élasticité de flexion au moyen de fils ou de rubans enroulés en hélice et fixés sous un pendule de torsion, dont le fil aurait été préalablement étudié comme ci-dessus. Divers états de torsion du fil de suspension correspondraient à diverses contraintes en flexion du ressort hélicoïdal, et la mesure de la période pour de très petites oscillations donnerait la variation du module d'YOUNG avec la contrainte.

### Elasticité et ferromagnétisme inapparent

par ALBERT PERRIER. Lausanne.

Au cours de la discussion de l'exposé de M. JAQUEROD<sup>1)</sup> l'auteur formule les considérations ci-dessous, qui font apparaître par un autre aspect l'intérêt de mesures de haute précision sur l'élasticité et par conséquent des procédés et résultats de notre collègue.

Dans les milieux ferromagnétiques, les variations de l'élasticité sont imputables pour la plus grande part à l'orientation (apolaire) des moments dans les domaines élémentaires, orientations

<sup>1)</sup> A. JAQUEROD, A propos de la loi de HOOKE, S. Suisse de Physique, session d'Aarau le 4 mai 1946.

provoquées par les déformations elles-mêmes. Les anomalies à la loi de HOOKE peuvent ainsi manifester à l'observation ces processus cachés.

En particulier, dans les intervalles étroits au voisinage d'une désaimantation parfaite, *la théorie fait prévoir deux fonctions d'allures différentes pour la liaison entre le module d'extension ( $E$ ) et le champ magnétique* (resp. l'aimantation observable), selon que la polarisation réversible (perméabilité initiale) aurait comme origine des *rotations* des moments de domaines ou des *translations des parois* (frontières) séparant des domaines.

Les deux mécanismes s'accordent à prévoir un module d'élasticité plus faible pour le corps désaimanté que pour le corps saturé (valeur « normale »). Les deux encore prévoient que la pente  $dE/dH$  part de zéro pour croître jusqu'à un maximum et redescendre ensuite progressivement jusqu'à zéro.

Mais, où seules joueraient des translations réversibles, le déficit initial de  $E$  doit être plus accentué et de plus  $dE/dH$  resterait sensiblement constante dans ces intervalles. Avec des rotations exclusivement, la croissance initiale de  $E$  doit manifester une allure parabolique.

De plus encore on justifierait des prévisions corrélatifs pour  $E$  en fonction de la contrainte mécanique.

De telles mesures, purement mécaniques, pourraient ainsi contribuer au choix entre deux théories magnétiques, cas échéant discriminer la part afférente à chaque étape à chacun des deux mécanismes.

Ces déductions sont contenues implicitement dans une communication récente<sup>1)</sup>; elles auraient été développées et le seront de toute façon dans la publication détaillée à paraître ultérieurement.

### **Einfluss von Fremdionen auf seignetteelektrische Eigenschaften**

B. MATTHIAS und W. MERZ, E.T.H. Zürich.

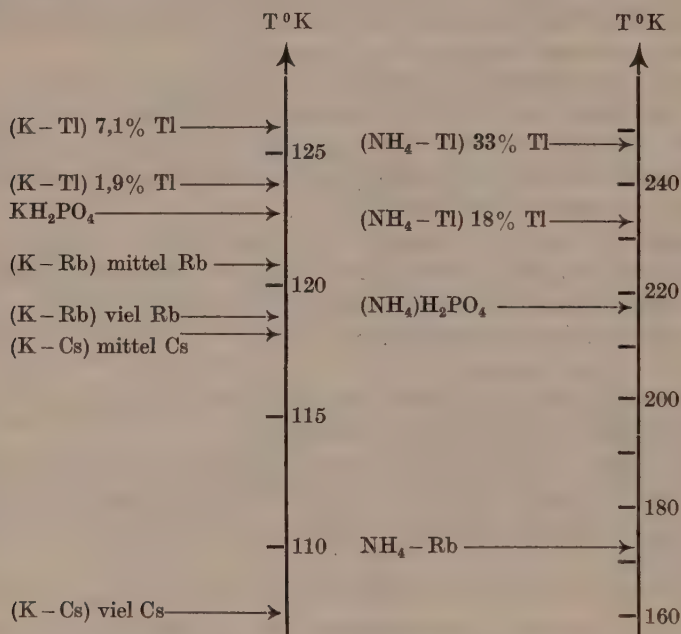
Wir wir früher schon an dieser Stelle<sup>2)</sup> mitgeteilt haben, durchlaufen bei allen seignetteelektrischen Phosphaten diejenigen Resonanzfrequenzen als Funktion der Temperatur ein Maximum, welche durch ein elektrisches Feld parallel der seignetteelektrischen

<sup>1)</sup> A. PERRIER, Magnétogalvanisme, rotations de moments et translations de parois de domaines cristallisés élémentaires. Soc. Suisse de Physique, session de Fribourg, sept. 1945; H.P.A. XVIII, 451 (1945).

<sup>2)</sup> Helv. Physica Acta 18, 238 (1945).



Achse zu Eigenschwingungen angeregt werden. Die Temperaturen dieser Maxima befinden sich oberhalb der Curiepunkte und zeigen einen auffallenden Zusammenhang mit den entsprechenden Temperaturen der Curiepunkte, indem die Temperaturdifferenz immer ungefähr  $80^\circ$  mit einer Schwankung von ca.  $\pm 5^\circ$  beträgt. Dies wurde an Einkristallen von  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ ,  $\text{KD}_2\text{PO}_4$  und  $\text{RbH}_2\text{PO}_4$  gemessen, ebenso an  $\text{KH}_2\text{AsO}_4$  wo die Temperaturdifferenz etwas grösser ist.



Das  $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$  wird zwar infolge einer  $\text{NH}_4$ -Rotationsumwandlung nicht seignetteelektrisch, zeigt aber den andern Phosphaten entsprechend auch ein Maximum der Resonanzfrequenz bei Anregung in der  $c$ -Richtung. Bei der näheren Untersuchung dieser  $\text{NH}_4$ -Umwandlung durch Einlagerung von Thalliumionen in das  $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ -Gitter ergab sich eine sehr deutliche Verschiebung des Maximums zu höheren Temperaturen mit wachsender Tl-Konzentration<sup>1)</sup>. Es legte das den Schluss nahe, dass infolge des oben erwähnten Zusammenhangs ein Mischkristall aus K- und Tl-Phosphat, soweit er realisierbar ist, eine Verschiebung des Curiepunktes zu höheren Temperaturen zeigen muss. Diese Vermutung wurde qualitativ und quantitativ bestätigt, indem die

<sup>1)</sup> Ausführliche Arbeit erscheint später an dieser Stelle.

Verschiebung annähernd linear mit der Tl-Konzentration zu höheren Werten erfolgt bei konstanter Temperaturdifferenz von ca. 80°.

Im Anschluss daran wurde nun allgemeiner der Einfluss von Fremdionen auf das Verhalten des Curiepunktes untersucht, wobei sich als wesentlichstes Ergebnis ein prinzipieller Unterschied zwischen den Alkaliionen  $K^+$ ,  $Rb^+$ ,  $Cs^+$  und auch  $NH_4^+$  gegenüber dem  $Tl^+$ -Ion zeigte. Denn während das Letztere beim Einbau in das  $KH_2PO_4$ -Gitter das Maximum und den Curiepunkt (beim  $NH_4H_2PO_4$  natürlich nur das Maximum) in gleicher Weise zu höheren Temperaturen verschiebt, zeigen die Alkaliionen den entgegengesetzten Effekt.

Es lässt sich daraus die wesentliche Folgerung ziehen, dass, obwohl das  $Tl^+$ -Ion im Vergleich zu den  $K^+$ - und  $Rb^+$ -Ionen, als auch zum  $NH_4^+$ -Ion den gleichen Ionenradius, Wertigkeit und Koordinationszahl besitzt, seine Polarisierbarkeit, durch die allein es sich wesentlich von den Alkaliionen unterscheidet, diesen Effekt bewirkt, der der Gitterverzerrung, wie sie durch den Einbau von Fremdionen erfolgt, entgegenwirkt. Auch in andern Beziehungen kann das Tl-Ion in Mischkristallen ganz spezielle Änderungen hervorrufen. So wächst beim  $(NH_4)H_2PO_4$  bei Tl-Zusatz der Piezomodul  $d_{14}$  sehr stark an, währenddem  $d_{36}$  kleiner wird.

### Piezoelektrizität der Zucker-Natriumhalogenide

VON B. MATTHIAS und W. MERZ, E.T.H. Zürich.

Von der grossen Mannigfaltigkeit piezoelektrischer Kristalle sind bisher nur drei Arten systematisch auf ihr piezoelektrisches Resonanzverhalten untersucht worden. Das sind der trigonale Quarz, das rhombische Seignettesalz und die zu ihm isomorphen Verbindungen, sowie die tetragonalen Phosphate des Kaliums, Ammoniums und anderer. Diese drei Kristallsysteme sind jedoch voneinander ganz verschieden im Aufbau und ihren physikalischen Eigenschaften. Ein Vergleich war deshalb hier nicht möglich.

Passend geschnittene Quarzplatten können durch ein elektrisches Wechselfeld in ihren mechanischen Eigenschwingungen angeregt werden. Man unterscheidet hier zwischen Längs- oder Transversalschwingungen und den Dicken- oder Longitudinalschwingungen. Es ist nun möglich für Schnitte in bestimmten Richtungen den Temperaturkoeffizient der Resonanzschwingungen in einem gewissen Temperaturbereich von sehr kleinen Werten

bis auf Null herabzudrücken. Zugleich zeigt die Rechnung, dass im allgemeinen dies für die beiden andern oben erwähnten Kristallsysteme nicht möglich ist. Im weiteren Unterschied zu diesen war es bisher nur mit Dickenschwingungen von Quarzplatten möglich, sehr grosse Frequenzen in der Grössenordnung von Megahertz zu erreichen. Wie weit diese Eigenschaften speziell nur mit dem Quarz oder überhaupt dessen Kristallsystem verknüpft sind, sollte dadurch entschieden werden, indem Kristalle gezüchtet wurden, die im gleichen System wie Quarz kristallisieren. Es sind das z. B. die Additionsverbindungen aus zwei Teilen *d*-Glucose und einem Teil Na-Halogenid (Cl, Br und J). Um auf rechnerischem Weg die Schnitte zu bestimmen für deren piezoelektrisch erregten mechanischen Eigenschwingungen der Temperaturkoeffizient gleich Null wird, wäre die Kenntnis aller elastischen Konstanten und ihre Temperaturabhängigkeit sowie die der thermischen Ausdehnungskoeffizienten notwendig. Um diese zeitraubenden Messungen zu vermeiden, wurden direkt die Resonanzfrequenzen in Funktion der Temperatur und daraus die entsprechenden Temperaturkoeffizienten bestimmt. Dies wurde für drei Plattenserien ausgeführt, bei denen die Plattennormale um drei zueinander senkrechte Achsen im Kristall gedreht wurde. Ähnlich wie beim Quarz zeigt auch hier der Temperaturkoeffizient starke Abhängigkeit vom Schnitt, besitzt aber im Gegensatz zu diesem immer das gleiche Vorzeichen bei einem mittleren Wert von  $180 \cdot 10^{-6}$ . Bei den gezüchteten Kristallen wurde, analog zum Quarz, die vorzügliche Eignung zu Dickenschwingungen im gleichen Frequenzgebiet und die gleiche Güte festgestellt, so dass, obwohl der Temperaturkoeffizient der Resonanzfrequenz sich noch nicht auf Null bringen lässt, es doch möglich ist, auch mittels synthetischer Kristalle das Frequenzgebiet in der Grössenordnung von MHz zu erfassen.

### Halleffekt im Siliciumcarbid

von G. BUSCH und H. LABHART, E.T.H. Zürich.

Zur Aufklärung des elektrischen Leitungsmechanismus des Siliciumcarbids (SiC) wurde der Halleffekt an diesem Halbleiter gemessen. Die Messungen wurden an den gleichen einkristallinen, stäbchenförmig geschliffenen SiC-Proben, deren Leitfähigkeit von Busch<sup>1)</sup> bestimmt worden war, durchgeführt. Die Messmethode gestattete statische Messungen des Halleffektes mit Gleich- und

<sup>1)</sup> G. BUSCH, H. P. A. **19**, 167 (1946).

Wechselstrom. Die Werte der Hallkonstanten schwanken zwischen 0,1 und  $10^4 \frac{\text{cm}^3}{\text{Cib}}$ . Aus dem Verlauf der Hallkonstanten im Temperaturbereich von  $100^\circ$ – $1100^\circ$  K konnten zusammen mit den Leitfähigkeitsmessungen die folgenden Schlüsse gezogen werden:

1. Die grünen SiC-Kristalle zeigen sämtliche *Elektronenleitung* in einem fast leeren Energieband, die schwarzen Kristalle hingegen *Löcherleitung* in einem fast vollbesetzten Energieband.

2. Bei grünen und schwarzen SiC-Kristallen sind *zwei* Störstellenniveaux am Leitungsmechanismus beteiligt. Ihre Lage im Energieschema des Kristalls kann aus den Messungen abgeschätzt werden. Einem dieser Störstellenniveaux muss Leitvermögen mit sehr kleiner Elektronenbeweglichkeit zugeschrieben werden. Die Störstellendichte schwankt zwischen  $10^{18}$  und  $10^{20}$  pro  $\text{cm}^3$ .

3. Bei hohen Temperaturen ist das Elektronengas in Entartung begriffen. Abweichungen von der WILSONschen Theorie der Halbleiter können bei Berücksichtigung dieses Umstandes in der Rechnung quantitativ erklärt werden.

Eine ausführliche Arbeit wird demnächst in den H.P.A. erscheinen.

### Eine neue Methode der Elektronenbeugung

von G. INDUNI, Zürich.

Die bisher bekannten Methoden der Elektronenbeugung sind analog denen für Röntgenbeugung mit fein ausgeblendeten Strahlenbündeln ausgeführt worden. Im Gegensatz zu Röntgenstrahlen besitzen wir für Elektronenstrahlen passende Linsen.

MONGAN<sup>1)</sup> hat zum Beispiel magnetische Linsen für Elektronenbeugungsversuche mit Vorteil verwendet. In der Tat ergibt eine dem Präparat vorgeschaltete Linse eine klassische Spektrographenanordnung wie in der Lichtoptik.

KOSSEL<sup>2)</sup> hat meines Wissens zuerst ausgiebigen Gebrauch von Elektronenlinsen gemacht und damit überraschende Effekte erzielt. Ihm war es zunächst daran gelegen, stark konvergente Bündel zu erhalten, um seine originellen Theorien der Beugung aus Gitterquellen auf Elektronenstrahlen zu übertragen.

Die Technik des Elektronenmikroskopes hat uns auf allgemein weiter verwendbare Möglichkeiten der Anwendung von Elektronen-

<sup>1)</sup> MONGAN, Dis. E.T.H. Zürich (1935).

<sup>2)</sup> KOSSEL, Nat. Wiss., p. 660, (1938). – Ann. d. Phys. I, **36**, 113 (1939). – Ann. d. Phys. I, **40**, 17 (1941).



linsen bei Beugungsversuchen gebracht, welche wir hier kurz beschreiben wollen:

Man denke sich eine Elektronenlinse kurz vor dem Präparat, deren Brennweite in weiten Grenzen veränderbar ist. Es ergeben sich damit folgende Möglichkeiten:

A) Die Elektronenquelle oder eine kleine Blende kann damit auf dem Leuchtschirm durch das Präparat hindurch abgebildet werden<sup>1)</sup>.

B) Die Elektronenquelle oder eine kleine Blende können damit auf das Präparat abgebildet werden. In diesem Falle durchsetzt der Strahl das Präparat mit kleinem Querschnitt und grosser Öffnung.

C) Besonders interessant wird die Anordnung, wenn man in logischer Weiterentwicklung dieser Gedanken die Elektronenquelle oder eine kleine Blende, in deren Nähe mit der Ebene des Präparates mit Hilfe der Elektronenlinse konjugiert und gleichzeitig eine andere Blende in der Nähe der Linse mit der Leuchtschirmebene konjugiert. Wir haben in diesem Falle einen klassisch definierten Strahlengang, wie er bei der bekannten KÖHLERSchen Beleuchtung am Lichtmikroskop vorkommt.

D) Ein weiterer Schritt in diesen, in der Praxis wenig angewendeten Methoden, besteht nun darin, dass man mit einer unter dem Präparat liegenden zweiten Elektronenlinse eine Zwischenebene bei verschiedener Einstellung der ersten Linse abbildet.

Durch diese *neue Methode D)*, welche unabhängig von uns, auch in Amerika<sup>2)</sup> gefunden wurde, kann man sehr viel über die Beugungserscheinungen von Elektronen an Materie erfahren. Im besonderen möchten wir kurz auf die Vorteile der Methode hinweisen:

Wenn wir zum Beispiel eine Blende von 0,1 mm im Verhältnis 10:1 im Präparat abbilden und gleichzeitig eine Blende von 0,2 mm im Verhältnis 40:800, d. h. 4 mm auf den Leuchtschirm abbilden, dann können wir sehr kleine Einkristalle bis beispielsweise 0,001 mm Durchmesser mit noch sehr genau definierten Beugungsflecken auf dem Leuchtschirm untersuchen.

Beleuchten wir aber zum Beispiel einen sehr dünnen Einkristall *flächenhaft* und bilden wir eine Zwischenebene nach dem

<sup>1)</sup> FINCH, Erg. d. Ex. Nat. Wiss. **16**, 353 (1937). – TRILLAT, Les diffractions électroniques, Hermann Paris. – INDUNI, Schweizer Archiv für Wissenschaft und Technik 1941.

<sup>2)</sup> ZWORYKIN, Electr. Optics a. El. Mikroskop John Wiley & Sons, New York p. 644 (1945). – HILLIER und BACKER, Journ of appl-Phys. Vol. **17**, 12 (1946).

Kristall ab, so erhalten wir auf dem Leuchtschirm das Bild der beleuchteten Fläche und gleichzeitig die von ihrer Struktur abgelenkten Strahlen. Das ist mit einer Optik nach der Methode D, wie sie im Elektronenmikroskop vorhanden ist, sehr leicht möglich, und wir erfassen gleichzeitig, sozusagen topographisch, die BRAGG'schen Reflexe und die Gebiete aus welchen sie stammen. Dies ist sehr interessant, weil wir dadurch und mit Hilfe der Theorien über Elektronenbeugung Einblick in die wirkliche Natur des Bildentstehungsprozesses im Elektronenmikroskop erhalten. Bekanntlich werden durch die Objektivblende gerade die Strukturreflexe abgefangen und der Kontrast gebildet.



Fig. 1.

Bildentstehung im Elektronenmikroskop.

Diese neue Untersuchungsmethode ist wichtig für das Verständnis der Bilder, welche das Elektronenmikroskop liefert. Die Theorie der Elektronenbeugung bei Durchstrahlung von dünnen Kristallen wurde noch nie in befriedigender Weise gegeben, weil dieser Vorgang weder dem Vorgang der Beugung von Licht durch Gitter noch dem der Beugung an Kristallen durch Röntgenstrahlen ähnlich ist. Es ist ein Phänomen, welches eher mit dem der Beugung von Lichtwellen an Ultraschallwellen vergleichbar ist. Herr Prof. Dr. J. WEIGLE, welcher uns auf die grosse Bedeutung dieser Methode aufmerksam gemacht hat, wird in nächster Zeit seine genaueren Ideen über diesen Gegenstand veröffentlichen.

---

### Die Kristallitgrösse dünner Antimonschichten

von W. LOTMAR.

Mit der von G. INDUNI oben beschriebenen neuen Methode der Elektronenbeugung wurden neuerdings aufgedampfte dünne Antimonschichten untersucht. Mit einem Strahldurchmesser von ca.  $30\ \mu$  am Ort des Präparates konnten einkristallartige Diagramme erhalten werden. Die Kristallite müssen also Durchmesser von ungefähr dieser Grösse haben, was in Übereinstimmung mit einer früheren Abschätzung aus polarisationsoptischen Befunden an solchen Schichten steht<sup>1)</sup>.

Andererseits zeigt das elektronenmikroskopische Bild eine Körnung von wesentlich kleineren Dimensionen (ca.  $30\ m\mu$ ). Falls diese Körnung nicht auf Dicken –, sondern auf Orientierungsunterschieden beruht, so muss es sich um eine mosaikartige Struktur mit weitgehender Regelung der Mosaikblöckchen handeln.

### Diraes Feldquantisierung und Emission von Photonen kleiner Frequenz<sup>2)</sup>

von W. PAULI, E.T.H. Zürich.

Die Bremsstrahlung beim Durchgang eines Teilchens der elektrischen Ladung  $e$  durch ein Kraftfeld mit der potentiellen Energie  $V(x)$  gibt im Falle der Emission von Photonen sehr kleiner Frequenz zu Effekten Anlass, zu deren Beschreibung die auf der Potenzreihenentwicklung nach dem Parameter  $e^2/\hbar c$  beruhende Störungstheorie nicht ausreicht. Diese Störungstheorie unterscheidet eine elastische Ablenkung des geladenen Teilchens, eine unelastische Streuung mit Emission eines Photons mit Energie zwischen  $\nu$  und  $\nu + d\nu$ , usw., wobei ein Prozess mit Emission von  $N$ -Photonen einen zu  $(e^2/\hbar c)^N$  proportionalen Wirkungsquerschnitt besitzt. Beschränken wir uns der Einfachheit halber auf ein schwaches Kraftfeld, für welches die BORNsche Näherung zulässig ist, so ist bei gegebenem Winkelbereich  $d\Omega$  der Ablenkung des Teilchens der Wirkungsquerschnitt der elastischen Streuung gemäss dieser Störungstheorie gegeben durch

$$dq_0 = d\Omega \cdot 16 \pi^4 \hbar^2 m^2 |(p_0' | V | p_0)|^2 \quad (1)$$

<sup>1)</sup> W. LOTMAR, Helv. Phys. Acta **18**, 369 (1945).

<sup>2)</sup> Die hier angegebenen Resultate sind das Ergebnis von Rechnungen, die zum Teil gemeinsam mit Herrn JAUCH ausgeführt wurden. Sie wurden auf dem Physikerkongress in New York im Januar 1944 vorgetragen, worüber ein kurzes Referat veröffentlicht ist. Siehe W. PAULI und J. M. JAUCH, Phys. Rev. **65**, 255 (1944).

der Wirkungsquerschnitt derselben Ablenkung, wenn ein Photon mit Frequenz zwischen  $\nu$  und  $\nu + d\nu$  emittiert wird, durch

$$dq_1 = d\Omega \cdot 16 \pi^4 \hbar^2 m^2 \frac{|\vec{p}_0'|}{|\vec{p}_0|} |(p_0' | V | p_0)|^2 C \frac{d\nu}{\nu} \quad (2)$$

wenn  $E_0, \vec{p}_0, \vec{v}_0$  Energie, Impuls und Geschwindigkeit des Teilchens der Masse  $m$  im Anfangszustand,  $E_0', p_0', v_0'$  die entsprechenden Grössen im Endzustand,  $(p_0' | V | p_0)$  das mit ebenen Wellen berechnete Matricelement der potentiellen Energie und

$$C = \frac{2}{3\pi} \frac{e^2}{\hbar c} \frac{(\vec{v}_0 - \vec{v}_0')^2}{c^2} \quad (3)$$

bedeutet. Der Energieverlust

$$\varepsilon = E_0 - E_0' \quad (4)$$

ist gleich 0 für den elastischen Prozess und gleich  $\hbar\nu$  für den Prozess der Emission eines Photons. Im Falle  $\varepsilon \ll E_0$ , der uns hier besonders interessieren wird, kann man statt (2) und (3) auch schreiben

$$dq_1 = dq_0 C \frac{d\nu}{\nu} \quad (2a)$$

$$C = \frac{2}{3\pi} \frac{e^2}{\hbar c} \frac{\vec{v}_0^2}{c^2} 2(1 - \cos \vartheta) \quad (3a)$$

wenn  $\vartheta$  den Streuwinkel des geladenen Teilchens bedeutet.

Das wesentliche Versagen der Störungstheorie besteht in der Divergenz des Integrales von  $dq_0$ , über kleine  $\nu$  bei  $\nu = 0$ . Deshalb blieb die Frage der theoretischen Berechnung der Korrektur des Streuquerschnittes durch die Bremsstrahlung, die im Prinzip einer experimentellen Prüfung zugänglich ist, ungelöst. Ein wesentlicher Fortschritt wurde erzielt durch eine von BLOCH und NORDSIECK<sup>1)</sup> angegebene kanonische Transformation der das Strahlungsfeld beschreibenden Variablen, die es erlaubt, die bei der Lichtemission emittierten „freien“ Photonen von den bereits bei Abwesenheit des äusseren Kraftfeldes im Felde des Teilchens vorhandenen Photonen zu unterscheiden. Das Resultat für den Wirkungsquerschnitt der Ablenkung des geladenen Teilchens in den Winkelbereich  $d\Omega$  und gleichzeitiger Emission von  $n_1$  Photonen in der Eigenschwingung mit Frequenz  $\nu_1, \dots, n_s$  Photonen in der Eigenschwingung mit Frequenz  $\nu_s$  ist nach dieser Theorie

$$dq = d\Omega \cdot 16 \pi^4 \hbar^2 m^2 \frac{|\vec{p}_0'|}{|\vec{p}_0|} |(p_0' | V | p_0)|^2 \cdot W \quad (5)$$

<sup>1)</sup> F. BLOCH und A. NORDSIECK, Phys. Rev. **52**, 54 (1937); A. NORDSIECK, Phys. Rev. **52**, 59 (1937).



worin der kombinatorische Faktor  $W$  durch

$$W = \prod_s \frac{1}{n_s!} W_s^{n_s} e^{-W_s} = e^{-\sum_s W_s} \prod_s \frac{W_s^{n_s}}{n_s!} \quad (6)$$

gegeben ist. Die Bedeutung von  $W$  ist wohlbekannt als die Wahrscheinlichkeit des gleichzeitigen Stattfindens unabhängiger Ereignisse. Die Summe der  $W_s$  über alle Eigenschwingungen mit Frequenzen zwischen  $\nu$  und  $\nu + d\nu$  hat den Wert

$$\sum_{(r, \nu + d\nu)} W_s = C \frac{d\nu}{\nu} \quad (7)$$

worin  $C$  die in (3) eingeführte Grösse ist. Während infolge des Energiesatzes

$$E_0 - E_0' = \varepsilon = \sum_s n_s \hbar \nu_s$$

sicherlich nur Eigenschwingungen mit  $\hbar \nu_s < E_0$  für die Lichtemission in Frage kommen, ist die Summe über die  $W_s$  im Exponenten von (6) zunächst über alle Eigenschwingungen zu erstrecken. Wegen der logarithmischen Divergenz dieser Summe für grosse  $\nu$  ist es jedoch nötig, die Summe bei einer vorläufig theoretisch nicht genau bestimmbar Frequenz  $\omega_1$  nach oben abzuschneiden, um sinnvolle Resultate zu erhalten<sup>1)</sup>. Im interessanten Fall  $e^2/\hbar c \ll 1$ <sup>2)</sup> ist dann nach PAULI und FIERZ das Resultat für den Streuquerschnitt der Ablenkung des Teilchens in den Winkelbereich  $d\Omega$  mit einem Energieverlust zwischen 0 und  $E$ , falls  $E \ll E_0$  gegeben durch

$$dq = (dq)_0 \left( \frac{E}{\hbar \omega_1} \right)^C \quad (8)$$

worin  $(dq)_0$  durch (1) definiert ist. Für  $\hbar \nu_s \ll E_0$  bedeutet überdies  $W_s$  die mittlere Anzahl der emittierten Photonen der betreffenden Eigenschwingung. Die Wahrscheinlichkeit, dass eine endliche Anzahl von Photonen emittiert wird, ist gleich Null. Auf diese Weise ist zwar die Schwierigkeit der Divergenz bei kleinen  $\nu$ , die in der Störungstheorie aufgetreten war, beseitigt, es ist aber eine neue Konstante  $\omega_1$  eingeführt, von der man zwar vermuten kann, dass sie beim Elektron von der Grössenordnung  $mc^2$  oder  $137 mc^2$  sein wird, deren Bestimmung aber ausserhalb der Möglichkeiten der gegenwärtigen Quantentheorie liegt.

<sup>1)</sup> W. PAULI und M. FIERZ, *Il Nuovo Cimento*, **15**, 1 (1938).

<sup>2)</sup> Diese Ungleichung schliesst formal den Grenzübergang zur klassischen Elektrodynamik aus.

Es scheint deshalb von Interesse, zu untersuchen, welches Resultat die DIRAC'sche Methode der Feldquantisierung, die in einer „hypothetischen Welt“ Photonen mit negativer Energie mit teilweise „negativen Wahrscheinlichkeiten“ neben den gewöhnlichen Photonen positiver Energie einführt, für den hier besprochenen Effekt ergibt. Es zeigt sich, dass in dieser Theorie der durch (6) gegebene Faktor  $W$  zu ersetzen ist durch

$$W' = W_+ W_-$$

mit

$$W_+ = \prod_s \frac{1}{(n_s^+)!} \left(\frac{W_s}{2}\right)^{n_s^+} e^{-W_s/2}, \quad W_- = \prod_s \frac{1}{(n_s^-)!} \left(-\frac{W_s}{2}\right)^{n_s^-} e^{+W_s/2} \quad (9)$$

worin  $n_s^+$  bzw.  $n_s^-$  die in der hypothetischen Welt emittierten Photonenzahlen mit positiver, bzw. negativer Energie bedeuten. Offenbar ist

$$W' = W_+ W_- = \prod_s \frac{1}{(n_s^+)!} \left(\frac{W_s}{2}\right)^{n_s^+} \prod_s \frac{1}{(n_s^-)!} \left(-\frac{W_s}{2}\right)^{n_s^-}, \quad (10)$$

die Exponentialfaktoren heben sich weg.

Die DIRAC'sche Vorschrift der Übersetzung der Resultate der hypothetischen Welt in die wirkliche Welt für einen reinen Emissionsprozess besteht darin, dass die  $n_s^-$  gleich Null gesetzt werden sollen und dass die Übergangswahrscheinlichkeiten mit  $2^{\sum n_s}$  zu multiplizieren sind. Dies führt zum Ergebnis, dass

$$W'' = \prod_s \frac{1}{(n_s)!} W_s^{n_s} \quad (11)$$

ohne den divergenten Exponentialfaktor statt des durch (6) definierten Ausdruckes  $W$  in der Formel (5) für den Streuquerschnitt einzusetzen wäre. Dies führt aber zu den Ausdrücken (1) und (2) der Störungstheorie und hiermit zu deren Divergenz für kleine  $\nu$  zurück, indem nun die Wahrscheinlichkeit der Emission einer endlichen Zahl von Photonen wieder endlich wird. Es scheint demnach, dass die DIRAC'sche Theorie, wenn in die wirkliche Welt zurückübersetzt, nicht zu richtigen Resultaten für die Häufigkeit beobachtbarer Strahlungsprozesse führt.

### Rayonnement d'accélération d'un électron dans l'effet Compton

par E. C. G. STÜCKELBERG et P. B. BOUVIER.

L'effet COMPTON se décrit de la manière suivante: lors de sa rencontre avec un photon, un électron subit un changement d'énergie et de quantité de mouvement, conformément aux lois

de conservation. Si l'électron est initialement au repos, l'énergie  $h\omega'$  du photon défléchi d'un angle  $\Theta_{\omega'}$ , aura pour valeur

$$h\omega' = h\omega \frac{1}{1 + \gamma(1 - \cos \Theta_{\omega'})} \quad \text{ou} \quad \gamma = \frac{h\omega'}{mc^2}. \quad (1,1)$$

L'électron, reculant dans une direction qui fait avec celle du photon incident un angle  $\Theta_{\epsilon'}$ , acquiert alors une énergie:

$$h\epsilon' = h\epsilon^* = mc^2 + \frac{h\omega \cdot 2\gamma \cos^2 \Theta_{\epsilon}}{(\gamma+1)^2 - \gamma^2 \cos^2 \Theta_{\epsilon}}; \quad h\epsilon = mc^2. \quad (1,2)$$

Or, l'accélération de recul de l'électron amène ce dernier à rayonner, de sorte que le système «électron+photon» perd de l'énergie  $h\epsilon_{\text{rad}}$  par rayonnement. Cette perte d'énergie vaudra, en supposant l'accélération uniforme pendant un temps  $\tau$ ;

$$h\epsilon_{\text{rad}} = \frac{2}{3} \int_0^{\tau} \frac{e^2}{4\pi c^3} \cdot |\ddot{\mathbf{z}}|^2 dt = \frac{2}{3} \frac{e^2}{4\pi} \frac{v^2}{c^3 \tau} \quad (1,3)$$

perte d'autant plus importante que la vitesse finale  $v$  de l'électron est grande, et que le temps  $\tau$  d'accélération est court. Quelle valeur adopter pour  $\tau$ ? Dans le cas des hautes énergies incidentes ou  $h\omega \gg mc^2$ , nous avons  $v \cong c$ , et en prenant

$$\tau_0 = \frac{\lambda_0}{c} \quad \text{où} \quad \lambda_0 = \frac{2}{3} \frac{e^2}{4\pi} \frac{1}{mc^2}$$

est<sup>1)</sup> le «rayon» classique de l'électron, nous obtenons comme limite supérieure de la perte d'énergie:

$$h\epsilon_{\text{rad}} = mc^2.$$

Ainsi l'électron, accéléré dans une direction  $\Theta_{\epsilon}$ , où il devrait avoir une énergie  $h\epsilon' \cong h\epsilon^*$  donnée par (1,2), et très supérieure à  $mc^2$ , ne portera en réalité qu'une énergie  $h\epsilon'$ , inférieure à  $h\epsilon^*$  par un terme de l'ordre de  $mc^2$ . Certaines considérations, relatives en particulier à la forme des sections d'efficacité pour la diffusion du rayonnement par des électrons libres, nous ont amené à concevoir une seconde possibilité pour le temps  $\tau$ , aux énergies élevées.

Cette nouvelle valeur  $\tau_1 = \frac{\lambda_1}{c}$ , correspond à la longueur d'onde de COMPTON  $\lambda_1 = \frac{h}{mc} = 2,42 \cdot 10^{-11} / 2\pi$  cm. Comme nous remarquons

<sup>1)</sup> Des travaux actuellement en cours dans l'institut de Physique à Genève montrent que, dans le cas  $e^2/4\pi\hbar c \gg 1$ , on doit prendre  $\tau = \tau_0$  dans la formule de PAULI-FIERZ.

que  $\tau_1 = \frac{3}{2} \cdot 137 \cdot \tau_0$  la perte d'énergie est alors seulement de  $0,005 \text{ mc}^2$  donc pratiquement inobservable. Nous avons cherché à obtenir une estimation quantitative de cet effet en procédant avec la théorie des perturbations en mécanique asymptotique (méthode de la matrice  $S$ .) Ayant abordé le problème de la diffusion en gerbe de deux photons, ou effet COMPTON double simultané, nous sommes arrivés à une probabilité de transition proportionnelle à  $\frac{d\varepsilon'}{\varepsilon^* - \varepsilon'}$ , donc divergente pour  $\varepsilon' = \varepsilon^*$ . Afin d'éviter cette difficulté, nous avons remplacé le facteur divergent

$\frac{1}{\varepsilon^* - \varepsilon'}$  par la fonction  $\frac{1}{\Gamma(c)} \frac{\tau^c}{(\varepsilon^* - \varepsilon')^{1-c}} \varepsilon^{-\tau(\varepsilon^* - \varepsilon')} (\varepsilon' < \varepsilon^*),$  nulle si  $(\varepsilon' > \varepsilon^*)$

proposée par MM. PAULI et FIERZ dans un problème analogue (Nuovo Cim. XV, 1938).  $C$  est un nombre qui dépend de  $\gamma$  et de  $\Theta_{\omega'}$ , que nous avons pu calculer en particulier dans les cas des «grands» et «petits» angles de diffusion, où l'on a respectivement  $\gamma (1 - \cos \Theta_{\omega'}) \gg 1$  et  $\gamma (1 - \cos \Theta_{\omega'}) \ll 1$  ( $\gamma \gg 1$ ).

La perte d'énergie de l'électron apparaît maximum lorsque l'électron est projeté en avant, le photon diffusé revenant alors en arrière ( $\Theta_{\varepsilon'} = 0$ ,  $\Theta_{\omega'} = \pi$ ); nous l'avons trouvée égale à  $5 \text{ mc}^2$  si  $\gamma = 100$  c'est-à-dire pour un photon incident de 50 millions de volts, et avec le temps  $\tau^0 = \frac{\lambda_0}{c}$  dans la fonction de PAULI-FIERZ, tandis qu'avec  $\tau = \tau$ , l'énergie perdue n'est plus que de  $0,06 \text{ mc}^2$ .

Pour une diffusion à angle droit ( $\Theta_{\omega} = \frac{\pi}{2}$ ), et  $\gamma = 100$ ; les valeurs relatives aux deux temps  $\tau^0$  et  $\tau$ , sont respectivement  $\text{mc}^2$  et  $0,02 \text{ mc}^2$ . Ces résultats sont en bon accord avec les considérations classiques et de nature purement qualitative présentées plus haut. A cela vient s'ajouter une perte d'énergie du photon diffusé que nous avons calculé de la même façon; pour  $\gamma = 100$  et  $\Theta_{\omega} = \pi$ , la perte est sensiblement la même avec  $\tau_0$  ou  $\tau_1$ , elle vaut  $0,016 \text{ mc}^2$  dans le premier cas, et  $0,013 \text{ mc}^2$  dans le second.

Remarquons enfin que si l'électron est chassé en avant ( $\Theta_{\varepsilon} = 0$ ) par un quantum de 25 millions de volts ( $\gamma \cong 50$ ), les pertes d'énergie pour  $\tau_0$  et  $\tau_1$  sont environ 15 fois plus faibles, comparées au cas  $\gamma = 100$ .

Les calculs détaillés qui ont fait l'objet d'une thèse de doctorat seront publiés dans les Arch. Soc. Phys. et Hist. Nat. Genève.

Il résulte d'une discussion récente avec M. le Dr WAEFFLER que l'effet considéré ne peut pas être soumis avec profit à l'expérience avant d'avoir examiné si un effet semblable n'intervient pas lors de la création de paires par le rayonnement gamma.



## Opérateurs non linéaires en théorie des quanta

par E. C. G. STÜCKELBERG et D. RIVIER.

La théorie des quanta utilise pour l'étude du système formé d'un quantum deux ensembles complémentaires de variables:

les  $X^1, X^2, X^3$ , qui localisent le quantum dans l'espace physique ou espace  $X$ ;

les  $P_1, P_2, P_3$ , qui localisent le quantum dans l'espace d'impulsion, espace complémentaire  $P$ .

Limitons-nous au cas d'une seule dimension.

La relation qui sert de base à la théorie est la relation de commutation:

$$i[P, X] = i(PX - XP) = h \mathbf{1} \quad (1)$$

entre les opérateurs linéaires  $P$  et  $X$  respectivement associés de manière biunivoque aux variables  $P$  et  $X$ . Combinée à l'inégalité de SCHWARTZ généralisée sous la forme:

$$P^2 \cdot X^2 \geq (\overline{i[P, X]})^2 \quad (2)$$

(1) entraîne la relation d'incertitude de HEISENBERG

$$(\Delta P)^2 \cdot (\Delta X)^2 \geq \frac{h^2}{4} \quad (3)$$

pourvu que l'on choisisse les axes de manière que  $P = X = 0$ .

Une des conséquences physiques de (3) est qu'il est possible de déterminer avec une incertitude nulle aussi bien la position  $X$  du quantum que son impulsion  $P$ , pourvu que cette précision soit compensée par une incertitude infiniment grande sur la variable complémentaire.

Or, toute théorie non contradictoire tend à montrer qu'il n'y a pas de sens à localiser un quantum à une incertitude  $\sqrt{(\Delta X)^2}$  inférieure à une longueur critique  $\lambda_0$ . Il faut donc joindre à la relation d'incertitude (3) l'autre inégalité:

$$(\Delta X)^2 \geq \lambda_0^2 \quad (4)$$

introduisant ainsi une dissymétrie entre l'espace  $X$  et l'espace  $P$ .

Une manière très simple de tenir compte de cette dissymétrie est de substituer à (3) la relation

$$(\Delta P)^2 \cdot (\Delta X)^2 = \frac{h^2}{4} \left( 1 - \frac{\lambda_0^2}{(\Delta X)^2} \right)^{-1} \quad (3a)$$

La relation de commutation (1) doit alors subir le contrecoup de cette modification, et s'écrire

$$i[\mathbf{P}, \mathbf{X}] = \left(1 - \frac{\lambda_0^2}{(\Delta X)^2}\right)^{-\frac{1}{2}} \mathbf{1}. \quad (1a)$$

Jointe à (2), elle fournit alors (3a). Mais cette nouvelle relation conduit à considérer des *opérateurs non linéaires*. En effet:

Si nous appelons  $\Psi^*(P)$  l'amplitude de probabilité attachée à  $P$ , telle que

$$\bar{P} = (\Psi^*, \mathbf{P} \Psi^*) \quad (5)$$

et de même  $\Psi(X)$  l'amplitude de probabilité de  $X$ , donnant

$$\bar{X} = (\Psi, \mathbf{X} \Psi) \quad (6)$$

il existe un opérateur de transformation  $\mathbf{S}$  tel que:

$$\Psi^* = \mathbf{S} \Psi \quad \text{ou} \quad \Psi^*(P) = S(P/X) \Psi(X); \quad (7)$$

la forme de la matrice représentative, d'élément  $S(P/X)$ , est imposée par la normalisation des amplitudes de probabilité  $\Psi^*(P)$  et  $\Psi(X)$  et par la relation de commutation (3) ou (3a).

Dans le cas où (3) est valable, on a:

$$S(P/X) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{i}{\hbar} PX\right) \quad (8)$$

dans le cas où l'on veut avoir (3a), il faut écrire

$$S(P/X) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{i\left(1 - \frac{\lambda_0^2}{(\Delta X)^2}\right)^{\frac{1}{2}}}{\hbar} PX\right]. \quad (8a)$$

Chaque élément  $S(P/X)$  de la matrice de transformation  $\mathbf{S}$  est fonctionnelle de la fonction  $\Psi(X)$  sur laquelle elle opère, par l'intermédiaire du nombre  $(\Delta X)^2 = (\Psi, (\Delta \mathbf{X})^2 \Psi)$ , fonctionnelle lui-même de l'amplitude de probabilité  $\Psi(X)$ . Cette matrice représente donc un opérateur *non linéaire*, que nous écrivons  $\mathbf{S}[\ ]$  pour le distinguer de l'opérateur linéaire  $\mathbf{S}$  et pour préciser qu'il n'est déterminé complètement que par la fonction  $\chi$  sur laquelle il opère. L'élément de la matrice représentative est:

$$S(P/X)[\chi] = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{i\left(1 - \frac{\lambda_0^2}{(\chi, (\Delta \mathbf{X})^2 \chi)}\right)^{\frac{1}{2}}}{\hbar} PX\right]. \quad (9)$$

En cinétique à trois dimensions, le nombre  $\overline{(\Delta X)^2}$  doit être défini comme l'incertitude minimum parmi toutes les incertitudes  $(\Delta X')^2, (\Delta X'')^2, \dots$  relatives à des axes ayant toutes les directions possibles. En théorie de relativité enfin, c'est la même définition qui vaut, mais rapportée au système de repos ( $\vec{P} = 0$ ).

### Une propriété de l'opérateur $S$ en mécanique asymptotique

par E. C. G. STÜCKELBERG.

En mécanique asymptotique, nous introduisons conformément aux idées de HEISENBERG, un opérateur unitaire:

$$S = 1 - i\alpha + \dots = e^{-i(\alpha + \dots)} \quad (1)$$

défini par une série unimodulaire en l'opérateur hermitien  $\alpha$ , qui s'écrit<sup>1)</sup>:

$$\alpha = \varepsilon \alpha^{(1)} + \dots; \quad \alpha^{(1)} = \varepsilon \int (dx)^4 u^+ u^+ \varphi^+ \varphi \quad (2)$$

$u$  et  $\varphi$  sont des «demi-champs», c'est-à-dire des fonctions complexes des variables  $\tilde{x}$  et  $t$ , mais ne possèdent que des fréquences positives (donc uniquement des opérateurs  $a^+$  et  $b^+$ ).

Alors l'effet «de première approximation (obtenu en n'utilisant dans  $S$  que les deux termes  $1 - i\alpha^{(1)}$ ) admet l'interprétation facile suivante: la collision entre un quantum initialement (c'est-à-dire à l'époque  $t = -T$ ) dans l'état  $k'$  du champ  $u$  et un quantum dans l'état  $\mu'$  du champ  $\varphi$ . En effet, la probabilité pour que finalement (à l'époque  $t = +T$ ,  $T = \infty$ ) l'on observe un quantum à l'état  $k''$  et  $\mu''$  est proportionnelle à la région  $(\Delta x)^4$  de l'espace temps où les paquets d'onde  $k'$ ,  $\mu'$ ,  $k''$  et  $\mu''$  diffèrent simultanément de zéro.

Si, comme l'a fait HEISENBERG, on ne considère alors dans la série (1) que les termes en  $\alpha^{(1)}$ , on démontre facilement qu'en seconde approximation déjà (en posant  $S = 1 - i\alpha^{(1)} + \frac{1}{2} (\alpha^{(1)})^2$ ), il faut admettre l'existence de collisions entre trois quanta  $k'$  et  $l'$  du champ  $u$  et  $\mu'$  du champ  $\varphi$  dont l'explication est en désaccord avec nos notions de causalité, et cela à l'échelle de l'espace-temps macroscopique: un quantum  $l'$  du champ  $u$  émet «un quantum  $\gamma$  (du champ  $\varphi$ ) d'énergie négative», pour pouvoir passer à un état  $l''$  en émettant un quantum  $\mu''$ , tandis que plus tard, au temps  $t''$

<sup>1)</sup> Nous renonçons, dans la suite, d'employer des caractères gras pour les opérateurs  $\alpha$ ,  $\mu^*$ , ....

$> t'$ , les quanta  $k'$  et  $\mu'$  entrent en collision triple avec ce quantum  $v'''$  d'énergie négative.

Ainsi donc, dans notre théorie qui exclut des énergies négatives, il y faudrait pourtant inclure des phénomènes dont la description spatiotemporelle comporterait de tels états.

Il existe un et un seul moyen d'éviter la contradiction précédente: c'est d'écrire  $S$  sous la forme d'une série de la forme

$$S = \frac{1 - i/2 \cdot \alpha}{1 + i/2 \cdot \alpha} = \exp \left( -i 2 \operatorname{tg}^{-1} \frac{\alpha^{(1)}}{2} \right)$$

$\alpha$  étant la série engendrée par  $\alpha^{(1)}$  et

$$\begin{aligned} \alpha^{(2)} &= \int (dx)^4 [u^+ u \varphi^+ \operatorname{sym}_a (\varphi u^+ u) + \varphi^+ \varphi u^+ \operatorname{sym}_\varphi (u \varphi^+ \varphi) \\ \alpha^{(3)} &= \dots \end{aligned}$$

Donc, sans utiliser le principe de correspondance asymptotique que nous avons énoncé dans un mémoire précédent<sup>2)</sup>, nous retrouvons, par simple application du principe de causalité, l'expression de l'opérateur  $S$  en fonction de  $\alpha$ , telle que nous l'avions obtenue dans les §§ 6 et 8 du mémoire cité.

### Diffusion d'électrons par un champ coulombien magnétique

par P. BANDERET et M. FIERZ, Bâle.

DIRAC a, le premier, considéré l'équation de SCHROEDINGER d'un électron dans un champ coulombien magnétique. Il a constaté qu'elle n'avait de solution acceptable du point de vue physique que si le pôle magnétique avait comme intensité un multiple de  $\frac{\hbar c}{2e}$ . Les fonctions propres ont été établies par TAMM et par FIERZ; ce sont en coordonnées polaires des produits d'une fonction de  $r$  par des fonctions des angles qui ne sont pas des fonctions sphériques.

Le problème de la diffusion d'électrons par le champ d'un pôle magnétique de DIRAC présente de ce fait un caractère particulier. On ne peut pas comme d'habitude, construire une solution représentant asymptotiquement une onde plane avec, comme perturbation, une onde émise par le centre. Mais on peut choisir les coefficients arbitraires de la solution de manière à avoir la superposition d'une onde incidente se comportant pour grands  $r$  comme

<sup>2)</sup> STÜCKELBERG, Mécanique fonctionnelle H.P.A. **14**, 51 (1943) (réf. I); **16**, 427 (1944) (réf. II); **17**, 3 (1945) (réf. III) **18**, 21 et 195 (réf. III et IV).



$\delta(\cos\Theta)$ ,  $\delta$  étant la fonction singulière de DIRAC, et d'un onde émergente. Les coefficients arbitraires sont complètement déterminés par cette méthode. On obtient pour l'onde émergente la superposition d'une diffusion analogue à celle de RUTHERFORD, et d'une perturbation qui n'est importante que dans la direction d'où vient l'onde incidente. Les résultats sont semblables à ceux que donne la mécanique classique.

(Un article plus détaillé paraîtra ultérieurement dans les H. P. A.)

---

### Sur la théorie des antennes de radio — Comparaison avec l'expérience

par J. PATRY, Albiswerk-Zürich-A.G.

Il y a quelques temps, MÜLLER et l'auteur ont publié trois brèves communications sur la théorie des antennes selon la méthode de HALLÉN<sup>1</sup>). Cette méthode est très pratique, car elle permet d'étudier non seulement les antennes linéaires simples, mais aussi des types plus compliqués. Comme elle n'est qu'une approximation, il était intéressant de comparer avec l'expérience les résultats auxquels elle conduit. METZLER, de l'administration des P.T.T. a fait, il y a un certain temps, une série de mesures qui nous ont servi de contrôle. Elles ont été publiées dans la thèse de doctorat de METZLER.

Les courbes projetées par l'auteur (qui paraîtront prochainement dans le Bulletin S. E. V.) montrent une très bonne concordance entre l'expérience et la théorie. Des calculs sont en cours pour comparer les résultats théoriques avec les mesures accomplies par des Anglais<sup>2</sup>). La théorie détaillée, dont la valeur pratique est ainsi démontrée, sera exposée prochainement dans le périodique «Schweizer Archiv».

---

<sup>1</sup>) MÜLLER und PATRY, H.P.A. **17**, 127, 159, 455 (1944).

<sup>2</sup>) ESSEN and OLIVER, Wireless Engineer **22**, 587 (1945).

---

**Die Absorption des Lichtes durch Sauerstoff  
im Wellenlängenbereich  $\lambda = 2100$  bis  $\lambda = 2400$  ÅE  
in Abhängigkeit vom Druck**

von **Walter Heilpern.**

(21. V. 1946.)

**A. Zusammenfassung.**

Es wurden in dem Gebiet des Absorptionskontinuums des Sauerstoffs zwischen  $\lambda = 2100$  und  $2400$  ÅE und bei neun verschiedenen Drucken (zwischen  $50$  und  $130$  kg/cm<sup>2</sup>) die Absorptionskoeffizienten bestimmt. Es ergab sich, dass die Absorption (wahrscheinlich) unabhängig von der Wellenlänge mit dem Druck exponentiell ansteigt. Der gefundene Wert des Druckexponenten beträgt  $\kappa = 2,12 \pm 0,01$ .

**B. Einleitung.**

Die Lichtabsorption des Sauerstoffs im Gebiet zwischen  $\lambda = 2100$  und  $2800$  ÅE ist deshalb so interessant, weil mehrmals nachgewiesen werden konnte, dass sie das BEERSche Gesetz nicht befolgt. In den Banden oberhalb  $2410$  ÅE wurde dies von FINKELNBURG und STEINER<sup>1)</sup> festgestellt, im Kontinuum unterhalb  $2410$  ÅE in einer früheren Arbeit des Verfassers<sup>2)</sup>. Diese letzteren Messungen wurden nur bei einer einzigen Wellenlänge ( $\lambda = 2144$  ÅE) bei Drucken von einer Atmosphäre und darunter ausgeführt. Für  $\kappa$ , den Druckexponenten, ergab sich der Wert  $1,55$ . Bei Drucken von über  $60$  kg/cm<sup>2</sup> fanden FINKELNBURG und STEINER in den Banden oberhalb  $2410$  ÅE eine quadratische Druckabhängigkeit; leider geben diese Autoren keine genauen Werte für die Extinktionskoeffizienten an<sup>3)</sup>. Ausserdem existieren bei einer weiteren Wellenlänge des Kontinuums ( $\lambda = 2100$  ÅE)

---

<sup>1)</sup> W. FINKELNBURG und W. STEINER, ZS. f. Phys. **79**, 69 (1932).

<sup>2)</sup> W. HEILPERN, H.P.A. **14**, 329 (1941).

<sup>3)</sup> H. SALOW (Diss., Berlin 1935) hat die Messungen von FINKELNBURG und STEINER fortgeführt. Aus den von ihm angegebenen Kurven lassen sich einige Werte für die Extinktionskoeffizienten, allerdings nur sehr ungenau, entnehmen. Einige Messpunkte beziehen sich auch auf das Kontinuum.

Messungen von WARBURG<sup>1)</sup> im Druckbereich zwischen 27,5 und 392,5 kg/cm<sup>2</sup>. Diese Messungen lassen sich durch eine von WARBURG aufgestellte Interpolationsformel recht genau darstellen. Aber diese WARBURGSche Formel führt zu dem Schluss, dass extrapoliert für hohe Drucke immer mehr das BEERSche Gesetz gültig wird ( $\kappa = 1$ ), während die erwähnten Versuche von HEILPERN ( $p < 1$  Atm.,  $\kappa = 1,55$ ) kombiniert mit denjenigen von FINKELNBURG und STEINER ( $p$  von 60 bis 500 kg/cm<sup>2</sup>;  $\kappa = 2,0$ ) das Gegenteil ergeben. Die vorliegende Untersuchung wurde ausgeführt, um diese Diskrepanz nach Möglichkeit zu klären. Die Versuche wurden über ein möglichst grosses Gebiet des Kontinuums erstreckt und zwar bei hohen Drucken (zwischen 50 und 130 kg/cm<sup>2</sup>). Auf diese Weise wurden sowohl die Versuche von WARBURG bei  $\lambda = 2100$  ÅE wiederholt, wie auch die Messungen von HEILPERN bei  $\lambda = 2144$  ÅE für hohe Drucke ergänzt. Auch wird nun der Vergleich mit den Ergebnissen von FINKELNBURG und STEINER sowie SALOW möglich, denn das untersuchte Kontinuum gehört ja zu den von diesen Autoren ausgemessenen Banden.

Besonders für die Absorption der Sonnenstrahlung durch den atmosphärischen Sauerstoff ist der genaue Gang von  $\kappa$  mit dem Druck von Bedeutung, da man den Beitrag der Absorption der hohen Luftschichten wegen des kleinen Sauerstoffpartialdrucks nur durch Extrapolation finden kann.

### C. Versuchsanordnung.

Die Bestimmung der Extinktionskoeffizienten erfolgte nach dem Verfahren der photographischen Lösungsspektrophotometrie mit zentriertem rotierendem Sektor<sup>2)</sup>. Hierbei wird das Absorptionsspektrum von Lösung und Lösungsmittel unter identischen Bedingungen photographiert. Lediglich die das Lösungsmittel durchsetzende Lichtintensität wird mit Hilfe des rotierenden Sektors mit der Extinktion  $E$  geschwächt. Für bestimmte Wellenlängen zeigen dann beide Spektren die gleiche Schwärzung; hier hat also die Extinktion des gelösten Stoffes den Wert  $E$ . Bei der vorliegenden Untersuchung tritt an die Stelle der Lösung das mit Sauerstoff vom Messdruck gefüllte, an die Stelle des Lösungsmittels das leere Absorptionsgefäss. Dieses braucht im letzteren Falle nicht ausgepumpt zu werden, sondern darf Sauerstoff von

<sup>1)</sup> E. WARBURG, Berl. Sitz. Ber., 230 (1915).

<sup>2)</sup> G. POOL, ZS. f. Phys. 29, 311 (1924); H. v. HALBAN, G. KORTÜM und B. SZIGETI, ZS. f. Elektrochem. 42, 628 (1936); G. KORTÜM, Diss. Zürich 1937; M. LITMANOWITSCH, Diss. Zürich 1939.

Atmosphärendruck enthalten, dessen Absorption vernachlässigt werden kann, da der kleinste Versuchsdruck  $50 \text{ kg/cm}^2$  beträgt und die Absorption des Sauerstoffs ungefähr quadratisch mit dem Druck zunimmt.

Mit dieser Methode erhält man bei jedem verwendeten Druck so viele Messpunkte, wie geeignete Sektoren vorhanden sind. In der Lösungsspektrophotometrie kann man dagegen durch kontinuierliche Veränderung der Schichtdicke die Anzahl der Punkte fast beliebig vermehren. Da aber in der vorliegenden Arbeit nicht Banden, sondern ein Kontinuum untersucht wurde, in dem die Absorption bei abnehmender Wellenlänge monoton ansteigt, genügen die durch die Zahl der vorhandenen Sektoren (14) gegebenen Messpunkte.

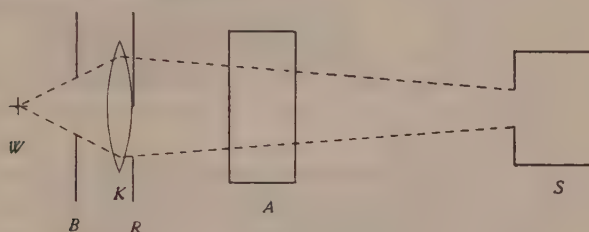


Fig. 1.

Die Versuchsanordnung geht aus der Fig. 1 hervor. Das von der Wasserstofflampe (*W*) emittierte Licht geht durch die Blende (*B*), wird durch den Kondensor (*K*), einen Flusspat-Achromaten, schwach konvergent gemacht und fällt nach dem Durchgang durch das Absorptionsgefäß (*A*) auf den Spalt des Spektrographen (*S*). Der rotierende Sektor (*R*) befindet sich nahezu in einer Hauptebene des Kondensors (*K*).

Über die im einzelnen verwendeten Apparate ist folgendes zu sagen:

1. *Die Lichtquelle:* Es wurde das Kontinuum einer Wasserstofflampe nach ALMASY<sup>1)</sup> benutzt. In dieser wird die Entladung derartig zusammengedrängt, dass der Leuchtraum nahezu punktförmig wird. Sie muss nach ungefähr 150 bis 200 Brennstunden neu mit Wasserstoff gefüllt werden. Der Lampenstrom von etwa 280 mA wird mit Eisenwasserstoffwiderständen konstant gehalten, so dass die Schwankungen 2 bis 3 mA, also etwa 1%, gewöhnlich nicht überschreiten. Natürlich wird aber die Änderung der Lichtintensität wesentlich grösser werden als die des Lampenstromes.

<sup>1)</sup> F. ALMASY, H.P.A. 10, 471 (1937).



Nach längerer Brenndauer traten Versuchsfehler von 5% und mehr auf, die nach der Neufüllung der Lampe wieder verschwanden. Es musste daher darauf geachtet werden, dass die Lampe immer rechtzeitig neu gefüllt wurde, wodurch Versuchsfehler grösser als die im Abschnitt D angegebenen vermieden wurden.

2. *Die Absorptionskammer:* Die Herstellung eines geeigneten Gefässes, das sowohl Drucke bis zu  $150 \text{ kg/cm}^2$  aushält, als auch das kurzwellige Ultraviolett bis herab zu  $2100 \text{ ÅE}$  möglichst ungeschwächt durchlässt, bereitete grosse experimentelle Schwierig-

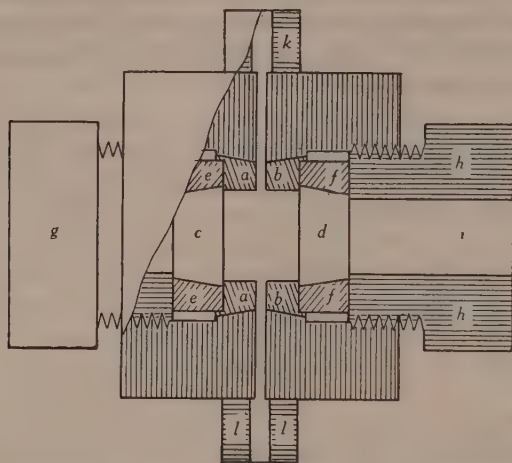


Fig. 2.

keiten. Die verwendete Konstruktion des Gefässes ist aus Fig. 2, die einen teilweisen Querschnitt darstellt, ersichtlich. Die beiden luftdicht in ein dickwandiges Eisengefäss eingeschliffenen Stahlkonusse (*a* und *b*) dienen zur Halterung der Quarzfenster (*c* und *d*) mit ihren Fassungen (*e* und *f*). Das Ganze wird mittels der Schrauben (*g* und *h*) zusammengepresst. Die Quarzfenster sind 1 cm dick und konusförmig in ihre Fassungen eingeschliffen, so dass sie durch den Sauerstoffdruck hineingedrückt werden. Die Fassungen bestehen aus besonders gehärtetem und geschliffenem Stahl; zur besseren Dichtung wurden die Quarzplatten vor dem Einsetzen mit einer dünnen Schicht von Graphit bestrichen. Die Dichtungen im Inneren des Absorptionsgefässes (zwischen *a* und *e*, bzw. zwischen *b* und *f*) bestehen aus dünnem, weichem Aluminiumblech, die der Zuleitungen und Ventile aus Weichfaser. Die Fenster wurden aus kristallinem Quarz hergestellt. Diese absorbieren trotz ihrer Dicke auch bei  $2100 \text{ ÅE}$  nur unwesentlich,

während von den zunächst verwendeten Platten aus amorphem Quarz die Wellenlängen unterhalb 2300 ÅE nur in sehr geringem Masse durchgelassen wurden.

Da das eigentliche Volumen der Absorptionskammer und das Zusatzvolumen, bestehend aus Zuleitungsrohr, Manometer usw., nur 50 cm<sup>3</sup> beträgt, war es schwer, den Druck während der Versuche konstant zu halten (geringfügige Undichtigkeiten machten sich stark bemerkbar). Deshalb war eine kleine 2-Liter-Flasche während der ganzen Messdauer mit dem Absorptionsgefäß in Verbindung. Auf diese Weise konnte der Druck während der Expositionszeit innerhalb der Messgenauigkeit konstant gehalten werden.

Die beiden am Absorptionsgefäß befestigten Messingstutzen (*k* und *l*) dienen zum Aufschrauben des Manometers bzw. des Zuleitungsrohres.

Die Schichtdicke des zu untersuchenden Sauerstoffs wurde auf folgende Weise bestimmt. Zwei gerade Kreiszylinder aus Messing wurden in die Öffnungen (*i*) der Verschlusschrauben (*g* und *h*) eingeführt, so dass sie die Quarzfenster (*c* und *d*) von aussen berührten. Der Abstand der äusseren Enden dieser Zylinder wurde mit einer Schublehre auf 0,02 mm genau gemessen und die Dicke der Quarzplatten sowie die Länge der Zylinder in Abzug gebracht. Es ergab sich für die Schichtdicke der Wert: 1,797 cm. Die Messung wurde öfters ausgeführt, um nachzuweisen, dass beim Auf- und Zuschrauben der Kammer zum Zweck der Reinigung der Fenster und der Entfernung von Rostspuren sich die Schichtdicke nicht ändert. Das war tatsächlich innerhalb der Versuchsgenauigkeit der Fall.

Für die kleinsten Wellenlängen war die Absorption bei den hohen Drucken zu gross; deshalb musste hier die Schichtdicke stark vermindert werden. Dies geschah durch Einlegen eines mit planparallel geschliffenen Endflächen versehenen Zylinders aus kristallinem Quarz in die Kammer. Um den neuen Wert der Schichtdicke zu erhalten (etwa  $\frac{1}{7}$  des ursprünglichen Betrages), konnte nicht einfach die Länge des Quarzzylinders in Abzug gebracht werden. Denn die Schichtdicke würde sich dann als Differenz zweier fast gleicher Längen ergeben und daher zu ungenau sein. Aus diesem Grunde wurde die kleinere Schichtdicke nicht direkt bestimmt, sondern die damit erhaltenen Extinktionswerte an bekannte Messungen mit der grossen Schichtdicke angeschlossen. Das geschah auf folgende Weise: Für einen bestimmten Sektor (mit der Extinktion 0,1707) konnten für fünf verschiedene Drucke (90 bis 130 kg/cm<sup>2</sup>) solche Messpunkte (Wellenlängen gleicher

Schwärzung) bei Verwendung der kleineren Schichtdicke erhalten werden, für die die Extinktion auch bei der grösseren Schichtdicke bekannt war. (Die Extinktion bei der grösseren Schichtdicke konnte aus den Kurven der Fig. 3 für die betreffende Wellenlänge direkt abgelesen werden.) Das Verhältnis der mit den beiden Schichtdicken erhaltenen Extinktionswerte ergab für jeden der fünf Drucke den Umrechnungsfaktor der Schichtdicken. Mit Hilfe des Mittelwertes dieser Umrechnungsfaktoren wurden dann alle bei der kleineren Schichtdicke bestimmten Extinktionswerte auf die grössere Schichtdicke umgerechnet. Für die kleinere Schichtdicke wurde auf diese Weise der Wert:  $(0,262 \pm 0,015)$  cm erhalten.

3. *Sauerstoff*: Für alle Messungen wurde besonders gut fraktionierter Sauerstoff (Medizinalsauerstoff) verwendet, wie er schon in der früheren Arbeit (l. c.) gebraucht worden war. Es konnte durch Versuche gezeigt werden, dass: 1) gewöhnlicher technischer aus Luft gewonnener Sauerstoff, 2) besonders sorgfältig fraktionierter ebenfalls aus Luft erhaltener sog. Medizinalsauerstoff und 3) Elektrolytsauerstoff innerhalb der Versuchsgenauigkeit gleiche Werte für die Extinktion ergaben. Dadurch wurde bewiesen, dass die in dem aus Luft gewonnenen Sauerstoff enthaltenen Verunreinigungen ( $N_2$ ,  $CO_2$ , Ar) im untersuchten Gebiet nicht merklich absorbieren, denn im Elektrolytsauerstoff können höchstens Spuren davon vorkommen. Da der Medizinalsauerstoff im Gegensatz zum gewöhnlichen technischen besonders gut getrocknet ist und beide die gleiche Absorption ergaben, ist auch bewiesen, dass der Wasserdampfgehalt die Messungen nicht merklich beeinflusst.

4. *Manometer*: Da die Absorption des Sauerstoffs im untersuchten Wellenlängenbereich ungefähr quadratisch vom Druck abhängt, musste besonderer Wert auf genaue Manometer gelegt werden. Zur Verwendung kamen Bourdon-Manometer<sup>1)</sup> mit einer Ablesegenauigkeit von etwa 0,5%. Sie wurden zu Beginn und am Ende der Messungen von der Herstellerfirma kontrolliert. Diese beiden Eichungen ergaben volle Übereinstimmung innerhalb der Messgenauigkeit.

5. *Sektoren*: Benutzt wurde ein Sektorensatz mit 14 Sektoren, der von Herrn Dr. KELLER im Physikalisch-chemischen Institut der Universität Zürich mit einer photoelektrischen Methode geeicht worden war. Von einem Sektor zum nächstfolgenden ändert sich die Extinktion stets etwa um den gleichen Betrag. Der Öff-

<sup>1)</sup> Hergestellt von der Firma Haenni in Jegenstorf (Schweiz); Messbereiche bis 80 bzw. 200 kg/cm<sup>2</sup>.

nungswinkel der Sektoren variiert zwischen  $9^{\circ} 23'$  und  $243^{\circ}$ , die Extinktion zwischen 1,5998 und 0,1707, die bis auf 0,01 % richtig sein dürften.

6. *Spektrograph*: Zur Verwendung gelangte der kleine Spektrograph E 370 von HILGER, der für das kurzwellige Ultraviolett besonders geeignet ist. Die Breite des Eintrittsspaltcs betrug für alle Messungen 0,1 mm; die Breite des Spaltbildes auf der photographischen Platte war ebenso gross. Auf Grund der Dispersion des Apparates entspricht dieser Breite des Spaltbildes je nach dem untersuchten Spektralgebiet eine Wellenlängendifferenz von 1,4 bis 2,0 ÅE.

Zum Beweis, dass im Spektrographen kein störendes Streulicht vorhanden ist, dienten die folgenden Untersuchungen:

Da die Höhe der Spektren wesentlich kleiner ist als die Höhe derjenigen Blende, auf welcher die photographische Platte direkt aufliegt, bestand die Möglichkeit, etwa vorhandenes Streulicht durch eine zusätzliche Schwärzung der Platte in der ganzen Höhe der Blende, d. h. auch unter- und oberhalb der Spektren, nachzuweisen. Es wurden deshalb Probeaufnahmen mit sehr langer Belichtungszeit gemacht, wobei die Teile der photographischen Platte, die nicht von den Spektren belichtet wurden, teilweise mit Stanniol vor eventuellem Streulicht geschützt wurden. Weder mit dem Auge noch mit einem lichtelektrischen Photometer konnte der geringste Schwärzungsunterschied zwischen den freien und den mit Stanniol geschützten Stellen nachgewiesen werden. Weiterhin wurden Vergleichsaufnahmen mit dem Spektrographen E 2 von HILGER gemacht. Dieser hat eine grössere Dispersion, absorbiert aber unterhalb 2200 ÅE so beträchtlich, dass nur im Bereich zwischen 2200 und 2400 ÅE gemessen werden konnte. Es wurde in diesem Gebiet das Absorptionsspektrum von  $K_2CrO_4$  in wässriger Lösung mit beiden Spektrographen aufgenommen, wobei durch Variation der Schichtdicke sehr viele Messpunkte erhalten werden konnten. Beide Apparate ergaben innerhalb der Versuchsgenauigkeit übereinstimmende Resultate.

Da anzunehmen ist, dass sich die Intensität von eventuell vorhandenem Streulicht mit der Spaltbreite ändert, wurde schliesslich noch eine Anzahl Aufnahmen bei gleichem Sauerstoffdruck und verschiedener Spaltbreite (0,1 und 0,03 mm) gemacht. Auch dabei ergab sich Übereinstimmung der Resultate innerhalb der Versuchsgenauigkeit.

7. *Platten*: Die für das kurzwellige Ultraviolett am besten geeigneten Ilford-Q-Platten und Agfa-Schumann-Platten waren



infolge der Kriegsverhältnisse nicht mehr erhältlich. Es wurde eine grosse Zahl der noch im Handel befindlichen Emulsionen geprüft; davon erwiesen sich nur die Agfa-Ultraviolett-Platten, die zum Ausgleich der Gelatineabsorption eine Schicht fluoreszierender Substanz enthalten, und die Agfa-Autolith-Platten, die orthochromatisch sensibilisiert aber gelatinearm sind, als geeignet. Die ersteren sind etwas empfindlicher, haben aber sehr grobes Korn; sie wurden daher nur für die kürzesten Wellenlängen benutzt. Die Autolith-Platten, die für alle übrigen Aufnahmen zur Verwendung kamen, ermöglichen, weil sie sehr feinkörnig sind und hart arbeiten, eine weit grössere Versuchsgenauigkeit.

8. *Ausmessung der Platten:* Das Verfahren war das gleiche wie bei v. HALBAN und Mitarbeitern (l. c.). Zwei Spektren, von denen das erste mit Sauerstoff vom Messdruck, das zweite mit Sauerstoff von Atmosphärendruck aufgenommen wurde, kamen auf der Platte aneinandergrenzend zu liegen und wurden gemeinsam photoelektrisch ausphotometriert. Durch die Aufnahme eines dritten Spektrums (mit Sauerstoff von Atmosphärendruck) konnte der Fehler kompensiert werden, der durch die Inhomogenität des Bildes der Lichtquelle in vertikaler Richtung auf dem Spektrographenspalt entsteht (vgl. LITMANOWITSCH l. c.).

Zur Festlegung der Wellenlängen auf den Aufnahmen wurde der Cu-Bogen verwendet.

#### D. Ergebnisse und Versuchsgenauigkeit.

Es wurden Messungen bei neun verschiedenen Drucken zwischen 50 und 130 kg/cm<sup>2</sup> ausgeführt. Mit den vierzehn zur Verfügung stehenden Sektoren konnte die Extinktion bei einem bestimmten Sauerstoffdruck für 5 bis 13 verschiedene Wellenlängen bestimmt werden. Jede solche Extinktionsmessung wurde mindestens zweimal ausgeführt und das Mittel (in bezug auf die Wellenlänge) genommen.

Als Beispiel ist in Tabelle I das vollständige Resultat einer solchen Messung bei dem Druck von 130 kg/cm<sup>2</sup> angegeben.

$N$  ist die Nummer des verwendeten Sektors,  $E$  dessen Extinktion<sup>1)</sup>,  $d$  ist die Schichtdicke,  $\varepsilon_p = \frac{E}{d}$  der Extinktionskoeffizient bei dem Druck  $p$  und  $n$  die Anzahl der ausgeführten Versuche,  $\lambda$  ist der Mittelwert der Wellenlängen gleicher Schwärzung.

Das Resultat aller Messungen ist in Fig. 3 dargestellt, wobei die Extinktion  $E$  als Funktion der Wellenlänge (Mittelwerte)

<sup>1)</sup>  $E$  ist definiert durch:  $J = J_0 \cdot 10^{-E}$ .

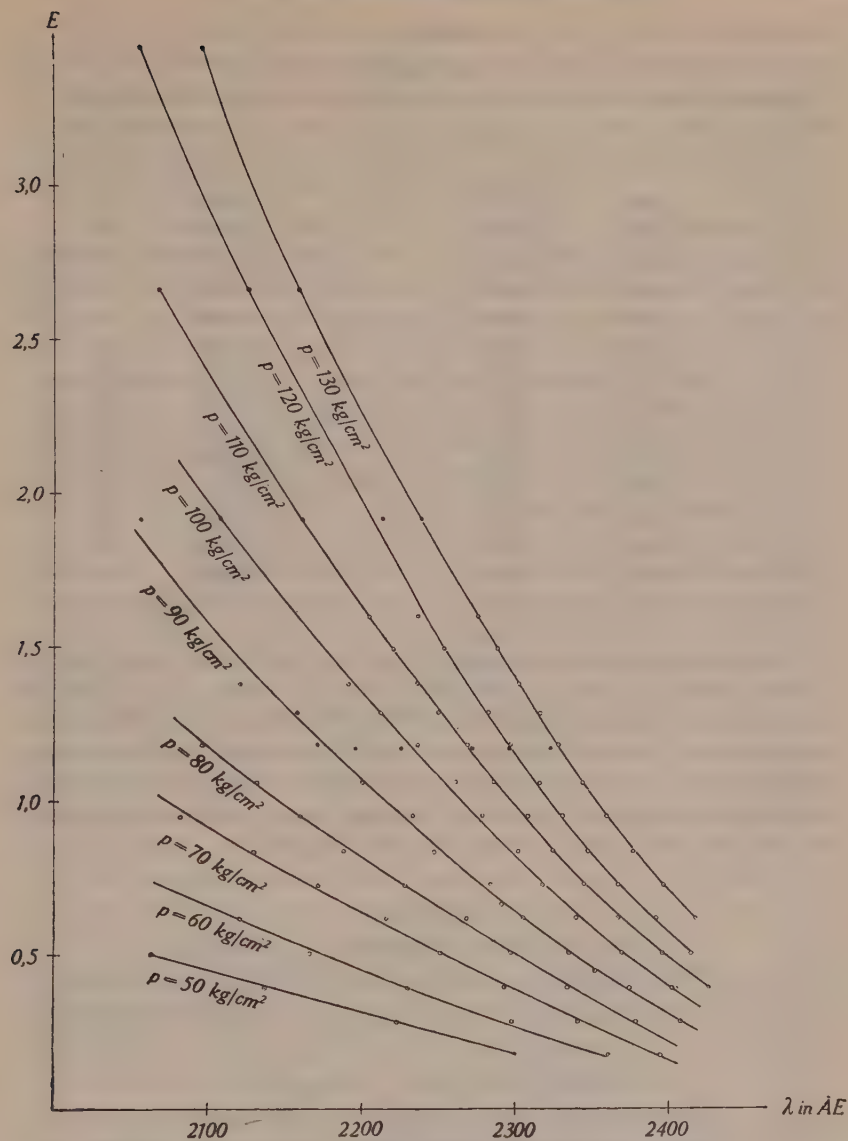


Fig. 3.

aufgetragen und der Druck als Parameter angegeben ist.  $E$  ist hier die Extinktion bezogen auf die Schichtdicke  $d = 1,797 \text{ cm}^1$ .

<sup>1)</sup> Die mit der grossen Schichtdicke ( $1,797 \text{ cm}$ ) erhaltenen Punkte sind in der Figur als leere Kreise, die mit der kleinen Schichtdicke ( $0,262 \text{ cm}$ ) erhaltenen Punkte als ausgefüllte Kreise dargestellt.

Tabelle I.

$$p = 130 \text{ kg/cm}^2.$$

$N$	$E$	$\lambda$ in ÅE	$d$ in cm	$\varepsilon_p = \frac{E}{d}$	$n$
1	1,5998	2275	1,797	0,8902	2
2	1,4944	2288	„	0,8316	4
3	1,3796	2302	„	0,7677	2
4	1,2855	2316	„	0,7153	4
5	1,1811	2328	„	0,6572	2
6	1,0586	2344	„	0,5890	4
7	0,9496	2360	„	0,5284	2
8	0,8341	2377	„	0,4641	4
9	0,7249	2397	„	0,4033	2
10	0,6171	2418	„	0,3434	4
11	0,5033	2096	0,2620	1,921	2
12	0,3887	2159	„	1,484	2
13	0,2798	2238	„	1,066	2
14	0,1707	2323	„	0,6516	2

Aus den ausgeglichenen Kurven der Fig. 3 sind nun für die Drucke 50, 60, 70, 80, 90, 100, 110, 120 und 130 kg/cm<sup>2</sup> für sieben verschiedene Wellenlängen von 50 zu 50 ÅE die Extinktionen entnommen. Hieraus wurden für die Drucke  $p$  die Extinktionskoeffizienten  $\varepsilon_p$  berechnet und in Tabelle II zusammengestellt. Dasselbe wurde auch für  $\lambda = 2144$  ÅE gemacht zum Vergleich mit der früheren Arbeit des Verfassers (l. c.).

Tabelle II.

Werte der Extinktionskoeffizienten  $\varepsilon_p$  bei 18° C.

$p$ in kg/cm <sup>2</sup>	2100	2144	2150	2200	2250	2300	2350	2400 in ÅE
50	0,247	0,214	0,209	0,171	0,134	0,095	—	—
60	0,366	0,312	0,306	0,249	0,196	0,147	0,102	—
70	0,511	0,437	0,427	0,353	0,284	0,213	0,148	0,086
80	0,651	0,558	0,545	0,451	0,363	0,275	0,195	0,121
90	0,878	0,750	0,733	0,600	0,477	0,359	0,255	0,172
100	1,097	0,933	0,913	0,752	0,598	0,456	0,326	0,221
110	1,324	1,131	1,107	0,904	0,719	0,547	0,392	0,273
120	1,630	1,402	1,365	1,104	0,849	0,644	0,457	0,319
130	1,893	1,572	1,536	1,257	1,013	0,772	0,565	0,393

Diese Extinktionskoeffizienten sind nun auch zahlenmässig gleich den Absorptionskoeffizienten, da eine Korrektur wegen der RAYLEIGHstreuung nicht nötig ist. Diese letztere wächst nämlich linear mit dem Druck an, während die Absorption ungefähr quadratisch mit dem Druck zunimmt. Die Korrektur bleibt immer kleiner als 0,1%, ist also zu vernachlässigen.

Die Temperatur betrug im Mittel 18° C. Ihre Änderung hatte keinen Einfluss auf die Extinktion innerhalb der Fehlergrenze der Messungen; deshalb konnte von einer Korrektur abgesehen werden. Würde das BEERSche Gesetz erfüllt sein, so wäre die Absorption der Anzahl der Moleküle proportional, bei konstantem Druck wäre sie also umgekehrt proportional der absoluten Temperatur  $T$ . Da aber im vorliegenden Fall das BEERSche Gesetz nicht gilt, weil die Absorption des Sauerstoffs von der Stosszahl der Moleküle abhängt, ist jetzt die Absorption nur umgekehrt proportional  $\sqrt{T}$ , also der Einfluss der Temperatur noch geringer.

Die Genauigkeit der Extinktionsmessungen wurde wie folgt berechnet. Die Abweichungen der *einzelnen* experimentellen  $E$ -Werte (nicht der in der Kurve eingezeichneten Mittelwerte) gegenüber den ausgeglichenen Kurven wurden bestimmt, und da diese Abweichungen weder mit der Wellenlänge noch mit dem Druck einen Gang zeigen, wurde daraus nach der Formel  $\Delta E = \sqrt{\frac{\sum (E - \bar{E})^2}{n-1}}$  der mittlere Fehler der Einzelmessung ( $\Delta E$ ) berechnet. Es ergab sich dafür der Wert 0,026, wenn für die Berechnung sämtliche 195 Messpunkte herangezogen wurden. Werden dagegen zur Bestimmung des Fehlers nur die Extinktionswerte benutzt, die bei der grossen Schichtdicke gemessen wurden, so erhält man  $\Delta E = 0,018$ , also einen wesentlich kleineren Wert. Die bei der kleinen Schichtdicke bestimmten Messpunkte (insgesamt 30) sind ungenauer ( $\Delta E = 0,052$ ), da hier, wie oben ausgeführt, infolge der Umrechnung von der kleinen auf die grosse Schichtdicke das Verhältnis der Schichtdicken eingeht. Der mittlere Fehler der Einzelmessung in den Extinktionskoeffizienten ( $\varepsilon_p = \frac{E}{d}$ ) beträgt danach für die bei der grossen Schichtdicke erhaltenen Messpunkte:  $\Delta \varepsilon = 0,010$ , für die bei der kleinen Schichtdicke erhaltenen Messpunkte:  $\Delta \varepsilon = 0,029$ .

Für die folgende Rechnung wird nur der Wert des mittleren Fehlers in der Extinktion für die bei der grossen Schichtdicke erhaltenen Messpunkte:  $\Delta E = 0,018$  verwendet. Aus diesem Gesamtfehler  $\Delta E$ , der teilweise auch noch durch die Ungenauigkeit der Druckmessung bedingt ist, soll nun der Fehler berechnet wer-



den, der durch die photographische Extinktionsmessung allein hervorgerufen wird (dieser wird im Folgenden mit  $\Delta E^*$  bezeichnet). Wie aus dem Abschnitt E dieser Arbeit ersichtlich ist, gibt die Formel  $E = E_0 p^2$  die Druckabhängigkeit der Extinktion im untersuchten Bereich mit einer für die Fehlerrechnung genügenden Genauigkeit wieder ( $E_0$  ist hier die Extinktion für den Druck 1). Aus dieser Formel ergibt sich  $\Delta E$  gemäss dem Fehlerfortpflanzungsgesetz zu:  $(\Delta E)^2 = (\Delta E_0 \cdot p^2)^2 + (\Delta p \cdot E_0 \cdot 2 p)^2$ .

Da  $\Delta E_0 \cdot p^2 = \Delta E^*$  ist, ergibt sich:

$$(\Delta E)^2 = (\Delta E^*)^2 + \left( \Delta p \cdot 2 \cdot \frac{E}{p} \right)^2.$$

Aus dieser Gleichung wurde  $\Delta E^*$  berechnet. Der absolute Fehler der Druckmessung  $\Delta p$  betrug im Mittel  $0,3 \text{ kg/cm}^2$ , für  $E/p$  wurde sowohl der grösste als auch der kleinste vorkommende Wert eingesetzt. Unter Benutzung des oben angegebenen Wertes für  $\Delta E$  (0,018) ergab sich so der minimale Wert von  $\Delta E^*$  zu 0,015, der maximale Wert zu 0,018. Der absolute Fehler  $\Delta E^*$ , der nur durch die photographische Extinktionsmessung hervorgerufen wird, liegt also zwischen diesen beiden Werten.

Es ist nun interessant, unseren Fehler  $\Delta E^* = 0,015$  bis 0,018 mit der Genauigkeit zu vergleichen, die von anderen Autoren mit derselben Methode bei der photographischen Lösungsspektrophotometrie erzielt wurde. KORTÜM und v. HALBAN<sup>1)</sup> geben für  $\Delta E^*$  den Wert 0,04<sup>2)</sup>, TWYMAN und LOTHIAN den Wert 0,01 an. Es wurde also bei den vorliegenden Versuchen die optimale Genauigkeit erreicht, die bisher mit der photographischen Methode erhalten wurde. Nach v. HALBAN und Mitarbeitern<sup>3)</sup> ist dieser Fehler dadurch bedingt, dass zwei Stellen einer Platte, die unter identischen Bedingungen exponiert und entwickelt wurden, immer eine im Mittel um den Betrag  $\pm \Delta S$  verschiedene Schwärzung zeigen. Verursacht wird dieser Fehler hauptsächlich durch die Korngrösse und die ungleichmässige Verteilung des Bromsilbers in der Platte. Da im allgemeinen  $\Delta E^* = \frac{\Delta S}{\gamma}$  ist, ist also der Fehler in der Extinktion um so kleiner, je grösser die Gradation  $\gamma$  der Platte in dem untersuchten Spektralgebiet ist. Der kleine Wert von  $\Delta E^*$  bei den vorliegenden Versuchen wurde ermöglicht durch die Verwendung der Autolith-Platten, die eine grosse Gradation und ausserdem ein sehr feines Korn und damit kleines  $\Delta S$  be-

<sup>1)</sup> G. KORTÜM und H. v. HALBAN, ZS.f. phys. Chem. (A) **170**, 212 (1934).

<sup>2)</sup> F. TWYMAN und G. F. LOTHIAN, Proc. phys. Soc. **45**, 643 (1933).

<sup>3)</sup> Z. B. H. v. HALBAN und J. EISENBRAND, ZS.f. wiss. Photogr. **25**, 138 (1928).

sitzen. Wäre es nicht nötig gewesen, für die kurzen Wellenlängen die empfindlicheren Ultraviolett-Platten mit kleinerer Gradation und größerem Korn zu benutzen, so wäre der Messfehler noch kleiner geworden.

### E. Diskussion der Ergebnisse.

Aus den Werten von  $\varepsilon_p$  und  $p$  der Tabelle II folgt, dass das *Beersche Gesetz* in dem untersuchten Wellenlängengebiet *nicht gültig* ist, denn sonst müssten bei konstanter Wellenlänge für den doppelten Druck auch die Extinktionskoeffizienten  $\varepsilon_p$  doppelt so gross sein. Das ist aber offensichtlich nicht der Fall; die  $\varepsilon_p$  nehmen mit wachsendem Druck viel schneller zu.

Es wurde daher versucht, bei konstanter Wellenlänge die gefundenen Extinktionskoeffizienten ( $\varepsilon_p$ ) als Funktion des Druckes ( $p$ ) durch die Exponentialfunktion  $\varepsilon_p = \varepsilon_0 \cdot p^{\varkappa}$  darzustellen. Hierbei sind  $\varepsilon_0$  und  $\varkappa$  Konstanten. Wir betrachten aber diese Formel nur als *Interpolationsformel* für das verwendete Druckintervall, so dass  $\varepsilon_0$  und  $\varkappa$  in anderen Druckgebieten andere Werte haben könnten. Für jede der in der Tabelle II angegebenen 8 Wellenlängen wurden  $\varkappa$  und  $\varepsilon_0$  nach der Methode der kleinsten Quadrate auf 3 Stellen genau berechnet<sup>1)</sup>.

Tabelle III.

$\lambda$ in ÅE	$\varkappa$	$\varepsilon_0 \cdot 10^5$	$m$	$x$	$y$	$m'$	$m^*$
2100	2,14	5,70 <sub>5</sub>	0,015	4	5	0,024	0,052
2144	2,11	5,56 <sub>3</sub>	0,021	5	4	0,022	0,041
2150	2,11	5,44 <sub>1</sub>	0,022	5	4	0,022	0,040
2200	2,10	4,66 <sub>1</sub>	0,014	6	3	0,019	0,028
2250	2,09	3,86 <sub>3</sub>	0,008	8	1	0,014	0,019
2300	2,13	2,43 <sub>0</sub>	0,007	9	0	0,011	0,019
2350	2,16	1,51 <sub>9</sub>	0,007	8	0	0,011	0,016
2400	(2,36)	0,40 <sub>3</sub>	0,007	7	0	0,011	0,021

$$\bar{\varkappa} = 2,12 \pm 0,01$$

Die Ergebnisse sind in Tabelle III dargestellt. Die erste Kolonne enthält die Wellenlänge in ÅE, die zweite die gefundenen  $\varkappa$ , die dritte die  $\varepsilon_0$ .

Wie man aus den angeführten Werten für  $\varkappa$  ersieht, ist  $\varkappa > 1$ , d. h. das BEERSche Gesetz hat keine Gültigkeit. Aber als wesent-

<sup>1)</sup> Es sei bemerkt, dass diese Rechnungen mit den *gemessenen* Extinktionswerten  $E$  ausgeführt wurden, erst nachher wurde auf die Extinktionskoeffizienten  $\varepsilon_p$  übergegangen. Es geschah dies, um vorzeitige Abrundungen zu vermeiden.

liches Resultat ist festzustellen, dass alle  $\kappa$  sogar grösser als 2 sind. Ein solches Verhalten ist bisher bei der Lichtabsorption in Gasen noch nie gefunden worden. Ferner ergibt sich, dass die Werte von  $\kappa$  als Funktion der Wellenlänge nur wenig variieren, wenn man den Wert bei  $\lambda = 2400$  ÅE ausschliesst. Es scheint daher berechtigt zu sein, im Wellenlängengebiet zwischen 2100 und 2350 ÅE  $\kappa$  als konstant anzusehen und den in Tabelle III angegebenen Mittelwert:

$$\kappa = 2,12 \pm 0,01$$

zu bilden. Ob auch der Wert bei  $\lambda = 2350$  ÅE, der am weitesten vom Mittelwert entfernt ist, auszuschliessen ist, kann wegen der Messfehler nicht sicher entschieden werden. Der Ausschluss des Wertes bei  $\lambda = 2400$  ÅE erscheint aber deshalb berechtigt, weil diese Wellenlänge sehr nahe am Anfang des Kontinuums ( $\lambda = 2410$  ÅE) liegt und daher einzelne unserer Messpunkte durch die oberhalb von  $\lambda = 2410$  ÅE liegenden Banden (untersucht von FINKELNBURG und STEINER, l. c.) gefälscht sein können. Diese Fehlerquelle ist durch die von uns verwendete Messmethode bedingt (Feststellung derjenigen Wellenlängen, für die die beiden zu vergleichenden Spektren dieselbe Schwärzung aufweisen).

Um zu zeigen, wie gut die Messungen durch die Interpolationsformel dargestellt werden, ist in der 4. Kolonne (Tabelle III) für jede Wellenlänge gesondert unter  $m$  die mittlere Abweichung der einzelnen Messung von dem berechneten Wert aufgeführt, also  $m = \pm \sqrt{\frac{\sum (\varepsilon_{\text{beob}} - \varepsilon_{\text{ber}})^2}{n-2}}$ . Zum Vergleich ist in der 7. Kolonne die „mögliche“ mittlere Abweichung  $m'$  angegeben, die sich aus den Messfehlern berechnet (vgl. Abschnitt D:  $\Delta\varepsilon = 0,010$  für die grosse Schichtdicke, bzw.  $\Delta\varepsilon = 0,029$  für die kleine Schichtdicke). Es bedeutet daher  $m' = \pm \sqrt{\frac{x \cdot 0,010^2 + y \cdot 0,029^2}{x+y-1}}$ , wobei  $x$  bzw.  $y$  die Anzahl der benutzten Messpunkte angibt, die mit der grossen bzw. der kleinen Schichtdicke erhalten wurden ( $x$  und  $y$  sind in den Kolonnen 5 und 6 der Tabelle III angegeben). Wie man sieht, ist  $m \leq m'$ . Das ist deshalb zu erwarten, weil sich die  $m$ -Werte auf die Genauigkeit der *ausgeglichenen Kurven* und nicht wie die  $m'$  auf die Fehler der *einzelnen Messpunkte* der Fig. 3 beziehen. Dieses Resultat weist aber auch darauf hin, dass die Darstellung unserer Messungen durch die Interpolationsformel nicht etwa neue Fehler (Darstellungsfehler) verursacht hat.

Schliesslich sind noch in der 8. Kolonne der Tabelle unter  $m^*$  Werte angegeben, die gleich definiert sind wie die  $m$ , aber mit dem Unterschied, dass die berechneten Extinktionskoeffizienten  $\varepsilon_p$

sämtlich mit dem Wert  $\kappa^* = 2,00$  berechnet wurden. (Dabei ist natürlich für jede Wellenlänge ein neues zugehöriges  $\epsilon_0^*$  zu ermitteln.)

Es erscheint nun von besonderer Bedeutung, dass diese  $m^*$ -Werte beträchtlich (bis über das Doppelte) grösser sind als die  $m'$ -Werte, d. h. grösser sind als die möglichen Abweichungen. Daraus ist aber mit Sicherheit zu folgern, dass sich unsere Messungen innerhalb der Beobachtungsfehler nicht durch eine Funktion  $\epsilon = \epsilon_0 p^{2,00}$  darstellen lassen, der Exponent  $\kappa = 2,00$  also mit unseren Messungen nicht verträglich ist.

Dieses Resultat scheint der Arbeit von FINKELNBURG und STEINER (l. c.) zu widersprechen. Diese Autoren haben für Drucke zwischen 60 und 600 Atm. die Lichtabsorption durch Sauerstoff in dem Triplett-Bandensystem oberhalb  $\lambda = 2410$  ÅE gemessen. Sie geben leider keine Zahlenwerte für die gefundenen Extinktionen an, und sie stellen auch ihre Ergebnisse graphisch in einem so kleinen Maßstabe dar, dass eine genauere quantitative Diskussion ihrer Resultate verunmöglicht wird. Um zu sehen, ob die Extinktion einem quadratischen Druckgesetz folgt, tragen die Autoren in Fig. 6 (S. 79, l. c.) die Extinktion als Funktion von  $p^2$  auf und behaupten, dass sie bei konstanter Wellenlänge gerade Linien erhalten, dass also die Annahme  $E = E_0 p^2$  erfüllt sei. Eine Betrachtung dieser Fig. 6 zeigt aber, dass das keineswegs der Fall ist. Die Kurven für  $\lambda = 2591, 2632$  und  $2678$  ÅE sind sehr deutlich konkav gegen die Abszissenachse (Extinktion) gekrümmt, hier ist also  $E$  nicht proportional  $p^2$ . Um eine Gerade zu erhalten, müsste der Exponent von  $p$  grösser als 2,0 sein in Übereinstimmung mit unserem Resultat. Für  $\lambda = 2730$  ÅE ist eine Gerade eingezeichnet, die aber nicht durch den Nullpunkt geht. Die Kurve für  $\lambda = 2784$  ÅE zeigt in ihrem oberen Teil ( $p > 300$  Atm.) eine Krümmung konvex gegen die Abszissenachse, hier wäre der Exponent von  $p$  kleiner als 2,0.

Unser Ergebnis, dass der Exponent grösser als 2,0 ist, zeigt sich also auch bei FINKELNBURG und STEINER, wurde aber von diesen Autoren übersehen. Zwar beziehen sich unsere Messungen auf das *Kontinuum*, während FINKELNBURG und STEINER *Banden* untersucht haben. Da aber dieses Kontinuum an die Konvergenzstelle der von FINKELNBURG und STEINER ausgemessenen Banden anschliesst, also zu dem Bandensystem gehört, muss angenommen werden, dass hier das gleiche Druckgesetz gültig ist.

Eine ähnliche Bestätigung unserer Ergebnisse finden wir in der Arbeit von SALOW (l. c.), die unter Leitung von STEINER aus-



geführt wurde. Hier ist die Absorption von Sauerstoff im Druckbereich von 15 bis 60 kg/cm<sup>2</sup> bestimmt worden. Ausführliche Messungen beziehen sich auf das Triplett-Bandensystem, einige wenige auch auf das anschliessende Kontinuum. In seiner Fig. 10 (S. 24) stellt SALOW seine gemessenen Extinktionen  $\log \frac{J}{J_0}$  als Funktion von  $p^2$  graphisch dar (die Zahlenwerte selbst sind leider auch wieder nicht angegeben) und behauptet, in dieser Darstellung bei konstanter Wellenlänge gerade Linien zu erhalten. Aber abgesehen davon, dass alle diese Geraden nicht durch den Nullpunkt verlaufen, sind auch die Geraden nur dadurch erhalten worden, dass die Lage der Beobachtungspunkte unterhalb  $p = 30$  kg/cm<sup>2</sup> völlig ignoriert worden ist. Berücksichtigt man diese aber, so erhält man überall, sowohl im Kontinuum wie auch in den Banden, eine Krümmung, die zeigt, dass der Exponent von  $p$  grösser als 2,0 ist.

Dass die Messungen von SALOW an sich gut mit unseren Messungen übereinstimmen, lässt sich an zwei Beispielen zeigen: Für  $\lambda = 2420$  ÅE und  $p = 60$  kg/cm<sup>2</sup> ist seiner Figur 10 der Wert der Absorption  $A = \frac{J_0 - J}{J_0} \cdot 100$  zu 90% zu entnehmen, wobei die von ihm verwendete Schichtdicke 21,0 cm beträgt. Unser Extinktionskoeffizient für  $\lambda = 2400$  ÅE, extrapoliert für 60 kg/cm<sup>2</sup>, ergibt ein  $A = 89\%$ . Für  $\lambda = 2375$  ÅE (im Kontinuum!) entnimmt man aus der Figur von SALOW bei 50 kg/cm<sup>2</sup>  $A = 89\%$ . Der aus unserer Kurvenschar der Fig. 3 interpolierte Wert des Extinktionskoeffizienten für  $\lambda = 2375$  ÅE und  $p = 50$  kg/cm<sup>2</sup> ergibt  $A = 88\%$ , also beide Male gute Übereinstimmung.

FINKELNBURG und STEINER ordnen dem von ihnen gefundenen Bandensystem einen  $^3\Sigma_g^- \rightarrow ^3\Delta_u$ -Übergang zu, der also auch dem in der vorliegenden Arbeit untersuchten Kontinuum zugrunde liegen muss. Der untere Term ist der Grundzustand des Sauerstoffmoleküls (die Dissoziationsgrenze entspricht dem Zerfall in zwei unangeregte Sauerstoffatome), der obere wurde wegen der Triplettstruktur der Banden und insbesondere wegen der Ungültigkeit des BEERSchen Gesetzes gewählt. Dieser Übergang ist nämlich wegen der Verletzung der Auswahlregel  $\Delta A = 0,1$  für das ungestörte Einzelmolekül streng verboten. Die Autoren nehmen an, dass eine merkliche Übergangswahrscheinlichkeit erst durch den Stoss mit einem zweiten Sauerstoffmolekül zustandekommt und dass erst dadurch eine nachweisbare Lichtabsorption entsteht. Damit erklären sie die Proportionalität der Extinktion mit dem Quadrat des Druckes. Dass  $\kappa$  grösser als 2 wird, ist aller-

dings auf Grund dieser Annahme nicht zu verstehen. Ein Grund dafür könnte darin liegen, dass die Wahrscheinlichkeit des Übergangs  ${}^3\Sigma_g \rightarrow {}^3\Delta_u$  beim gleichzeitigen Stossakt zwischen drei Sauerstoffmolekülen noch weiter vergrößert wird.

In der früheren Arbeit des Verfassers (l. c.) wurde für die Wellenlänge 2144 ÅE bei Drucken zwischen 148 und 625 mm Hg ein kleinerer Wert für  $\kappa$ , nämlich 1,55, gefunden. Wie aus dem Folgenden hervorgeht, steht dies mit den neuen Ergebnissen nicht im Widerspruch. In dem gleichen Wellenlängengebiet, in dem FINKELNBURG und STEINER das oben beschriebene Bandensystem bei hohen Drucken gefunden haben, entdeckte HERZBERG<sup>1)</sup> bei einem Druck von 1 Atm. und einer Schichtdicke von 25 m ein von diesem verschiedenes Bandenspektrum. Zwar besitzen beide Systeme innerhalb der Fehlergrenze die gleiche Konvergenzstelle, aber die Bandenmaxima stimmen in der Lage nicht überein, ausserdem sind sie bei FINKELNBURG und STEINER dreifach, bei HERZBERG nur einfach. Der wichtigste Unterschied aber besteht darin, dass die Intensität der HERZBERGBanden mit dem Druck langsamer anwächst als die der FINKELNBURG-STEINER-Banden. Das geht besonders klar aus den Untersuchungen von SALOW (l. c.) hervor, der gezeigt hat, dass bei einem Druck von 5 Atm. und einer Schichtdicke  $d = 7,5$  m nur die Herzbergbanden, bei 12 Atm. ( $d = 5$  m) beide Bandensysteme gleichzeitig und bei 14 Atm. ( $d = 5$  m) nur noch die Finkelburgbanden auftreten.

HERZBERG ordnet dem von ihm gefundenen Bandensystem einen  ${}^3\Sigma_g^- \rightarrow {}^3\Sigma_u^+$ -Übergang zu. Dieser ist auch verboten, aber nicht exakt, so dass auch dem einzelnen Molekül eine schwache Absorption zukommt. Dieser Umstand weist auch darauf hin, dass  $\kappa$  für die HERZBERG-Banden einen kleineren Wert hat als für die Triplet-Banden von FINKELNBURG und STEINER.

Es ist nun anzunehmen, dass auch das Absorptionskontinuum in dem von uns untersuchten Wellenlängenbereich zusammengesetzt ist, dass sich hier also die Kontinua, die zu den HERZBERG- und den Triplet-Banden gehören, überlagern. Demzufolge muss auch die Absorption im Kontinuum aus einem Anteil mit grösserem  $\kappa$  und einem Anteil mit kleinerem  $\kappa$  bestehen. Dabei überwiegt der kleinere Wert für  $\kappa$  bei den kleinen, der grössere bei den hohen Drucken. Im Zwischengebiet wächst  $\kappa$  mit zunehmendem Druck monoton an. Es soll nun gezeigt werden, dass die in der vorliegenden und in der früheren Arbeit des Verfassers gefundenen Extinktionskoeffizienten bei der Wellenlänge  $\lambda = 2144$  ÅE

<sup>1)</sup> G. HERZBERG, Naturwiss. 20, 577 (1932).

und im Druckintervall zwischen 148 mm Hg und 130 kg/cm<sup>2</sup> diesen Sachverhalt erfüllen. Zu diesem Zweck wurde in der Fig. 4 für diese Wellenlänge  $\log \varepsilon_p$  als Funktion von  $\log p$  aufgetragen<sup>1)</sup>. Durch die logarithmische Darstellung wird der Gang von  $\varkappa$  mit

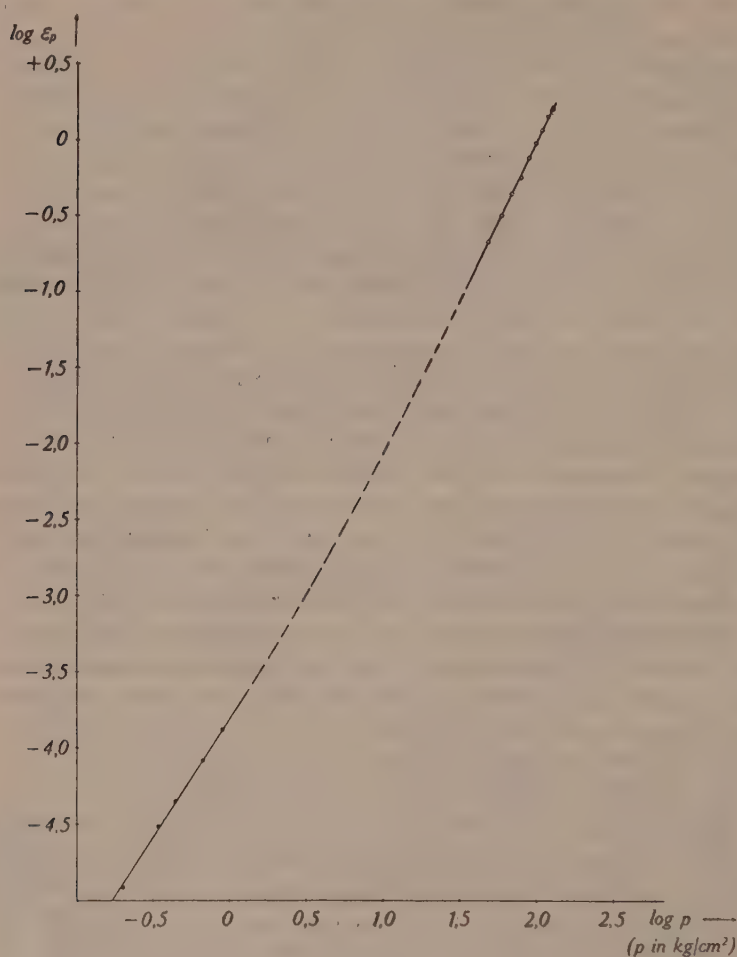


Fig. 4.

dem Druck besonders deutlich. Denn aus  $\varepsilon_p = \varepsilon_0 p^\varkappa$  folgt  $\log \varepsilon_p = \log \varepsilon_0 + \varkappa \cdot \log p$ . Durch  $\varkappa$  ist also in jedem Punkt der Kurve deren Steilheit gegeben. Wie man sieht, lassen sich die

<sup>1)</sup> Die in der früheren Arbeit bei niedrigen Drucken erhaltenen Punkte sind dabei durch ausgefüllte Kreise, die in der vorliegenden Arbeit bei hohen Drucken erhaltenen Punkte durch leere Kreise dargestellt.

Messpunkte aus der alten und der vorliegenden Arbeit durch eine Kurve darstellen, deren Steigung monoton grösser wird.

Die im Gebiet von  $\lambda = 2100$  ÅE ausgeführten älteren Messungen von WARBURG (l. c.) sind schon in der früheren Arbeit des Verfassers zum Vergleich herangezogen worden. Das in den vorliegenden Messungen untersuchte Druckintervall ist in den Versuchen von WARBURG mitenthalten.  $\kappa$  beträgt bei ihm etwa  $1,70^1$ ; er selbst stellt seine Ergebnisse nicht durch  $\varepsilon_p = \varepsilon_0 p^\kappa$ , sondern durch eine andere Interpolationsformel dar, die die Messungen sehr gut wiedergibt.

Tabelle IV.

 $\lambda = 2100$  ÅE.

$p$ (in kg/cm <sup>2</sup> )	$\varepsilon_p$ WARBURG	$\varepsilon_p$ HEILPERN
50	0,270	0,247
60	0,372	0,366
70	0,487	0,511
80	0,613	0,651
90	0,754	0,878
100	0,905	1,097
110	1,066	1,324
120	1,237	1,630
130	1,419	1,893

Aus Tabelle IV und Fig. 5 ergibt sich der Vergleich zwischen den WARBURGSchen und den vorliegenden Resultaten. Die Extinktionskoeffizienten von WARBURG wurden dabei für die angegebenen Drucke mit Hilfe der von ihm aufgestellten Interpolationsformel für reinen Sauerstoff (l. c., S. 241) berechnet. Gemäss dem grösseren Wert für  $\kappa$  wachsen die aus den vorliegenden Versuchen gewonnenen Extinktionskoeffizienten viel schneller an als die von WARBURG; bei 50 und 60 kg/cm<sup>2</sup> sind sie dagegen noch etwas kleiner. Bei den höheren Drucken wird der Unterschied sehr gross. Zur Erklärung dieser Abweichung sei Folgendes angeführt: WARBURG benutzte als Lichtquelle den Zn-Funken. Von dieser verwendete er für seine Messungen einen Wellenlängenbereich, der das Gemisch sämtlicher Zn-Linien zwischen „ $\lambda = 2030$  und  $\lambda = 2140$  ÅE“ enthält<sup>2)</sup>; als Mittelwert setzt er  $\lambda = 2090$  ÅE<sup>3)</sup>.

<sup>1)</sup> W. HEILPERN, l. c., S. 345.

<sup>2)</sup> E. WARBURG, Berl. Sitz. Ber., 747 (1911).

<sup>3)</sup> E. WARBURG, Berl. Sitz. Ber., 234 (1915).



Es handelt sich dabei wahrscheinlich um die folgenden Linien:  $\lambda = 2025, 2061/64, 2101, 2140 \text{ \AA}$ . Für die beiden letzten Wellenlängen wäre die gleiche Druckabhängigkeit wie bei den vorliegenden Messungen zu erwarten, nicht aber bei den Linien kürzerer Wellenlänge. Diese liegen nämlich in einem Bereich, wo sich dem hier untersuchten Kontinuum Banden überlagern, die zu dem intensiven SCHUMANN-RUNGE-FÜCHTBAUER-System<sup>1)</sup> gehören und dem

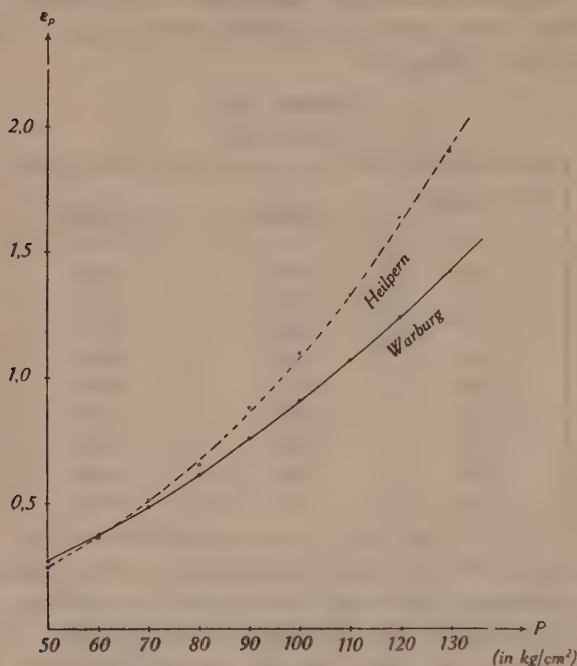


Fig. 5.

erlaubten Übergang  $^3\Sigma_g^- \rightarrow ^3\Sigma_u^-$  entsprechen. Deren Intensität wächst linear mit dem Druck an, wie in dem ihnen zugehörigen Kontinuum nachgewiesen wurde<sup>2)</sup>. Die Absorption setzt sich also bei diesen Wellenlängen aus zwei Anteilen zusammen, für den einen ist  $\alpha$  ungefähr 2, für den anderen gleich 1. Für das ganze von WARBURG verwendete Wellenlängengemisch muss demnach  $\alpha$  einen kleineren Wert als 2 haben. Daher müssen die von ihm

<sup>1)</sup> Hdb. d. Exp. Phys. Erg. Bd. I, 366 (1931); CHR. FÜCHTBAUER und E. HOLM, Phys. ZS. **26**, 34 (1925); ferner Lit. betr. das Auftreten dieser Banden in der Atmosphäre, z. B. bei H. BUISSON, C. JAUSSEON und P. ROUARD, Rev. d'Optique **12**, 70 (1933).

<sup>2)</sup> E. G. SCHNEIDER, Journ. of Chem. Phys. **5**, 106 (1937).

gefundenen Extinktionskoeffizienten langsamer mit dem Druck anwachsen als die aus den vorliegenden Versuchen gewonnenen, wodurch die Abweichung völlig erklärt ist.

Die vorliegende Arbeit wurde im Physikalischen Institut und im Physikalisch-chemischen Institut der Universität Zürich ausgeführt. Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. EDGAR MEYER, bin ich für viele fördernde Ratschläge und die ausführliche Diskussion der Resultate sowie für die zur Verfügung gestellten Institutsmittel zu grösstem Dank verpflichtet. Herrn Prof. v. HALBAN danke ich für die Überlassung der spektralphotometrischen Apparatur und für seine Ratschläge. Herrn Dr. K. WIELAND möchte ich für seine liebenswürdige Unterstützung und viele Anregungen bei der Ausführung der Experimente meinen besten Dank aussprechen, ebenso den Herren Prof. K. ZUBER, Prof. P. GOETZ und Dr. K. MEYER für aufschlussreiche Diskussionen.

Zürich, Physikalisches Institut der Universität.

---

# Sur la phase variable de fermeture de l'écoulement d'un liquide visqueux dans un tube horizontal raccordé à un réservoir

par P. Lambossy.

(26. V. 1946.)

## 1. Introduction.

L'écoulement stationnaire d'un liquide *visqueux* dans un tube a été étudié depuis longtemps et a fait l'objet de nombreuses recherches théoriques et expérimentales. Au contraire la période variable de cet écoulement quand le dispositif de fermeture fonctionne dans un sens ou dans l'autre constitue un problème dont on ne voyait pas l'importance pratique, à en juger d'après le peu de travaux qui ont paru sur ce sujet. Je dois citer cependant un article remarquable de GRUMBACH<sup>1)</sup> concernant la phase initiale de l'écoulement dans un tube capillaire vertical, en vue de l'application aux viscosimètres. Avec des modifications de détail ces calculs s'appliquent à un écoulement dans un tube horizontal relié à un réservoir, la pression à l'origine du tube et celle à l'extrémité étant maintenues rigoureusement constantes. En lisant cet article, on est surpris de voir que la solution mathématique exacte d'un problème dont l'énoncé est si simple exige des développements étendus (GRUMBACH le fait remarquer lui-même), et on peut se demander si une voie plus commode pourrait conduire à des résultats d'une exactitude suffisante. Cette idée devient d'une impérieuse nécessité si on veut traiter des cas complexes, ceux où des tubes de sections inégales sont raccordés. Car le phénomène hydraulique à l'endroit du raccordement, et surtout dans l'état variable, est d'une complication telle qu'il ne peut se mettre rigoureusement en équation. De plus, on n'oubliera pas que les expériences elles-mêmes sont difficiles, et qu'il est malaisé de se mettre dans les conditions théoriques voulues; ce de fait il n'est pas dit qu'un traitement prétendu correct donnerait des résultats concordant mieux avec l'expérience qu'une méthode approchée.

<sup>1)</sup> A. GRUMBACH, *Sur l'écoulement libre des liquides dans les tubes capillaires*. J. de Phys. et le Radium, t. 9, p. 49 (1938). Cet article a paru antérieurement plus succinctement dans les Comptes-Rendus, en 1936, p. 1653.

L'Institut de physiologie de l'Université de Fribourg entreprend depuis quelques années, sous la direction de A. MÜLLER, des recherches sur la période variable de l'écoulement visqueux. Leur but est l'étude, sur des modèles et dans des circonstances particulièrement simples, du phénomène de la circulation du sang. Cette méthode est probablement la seule possible du moment que le phénomène réel est inabordable au calcul.

Dans une expérience récente, dont on trouvera la description détaillée dans *Helv. physiol. Acta*, 1946<sup>1)</sup>, un liquide doué de viscosité (glycérine+eau) contenu dans un réservoir s'écoule dans un tube horizontal en régime laminaire. On ferme alors progressivement l'extrémité du tube au moyen d'un dispositif de fermeture approprié; la vitesse du liquide dans le tube diminue jusqu'à zéro suivant une certaine loi et en même temps la pression s'élève. C'est le phénomène connu du coup de bélier. Cette question présente au point de vue technique, pour les conduites forcées, un haut intérêt; elle a été étudiée théoriquement et expérimentalement; mais dans ce cas technique, contrairement à celui qui va nous occuper, la viscosité de l'eau a un effet négligeable.

La durée de l'état variable est d'ordinaire si courte que la viscosité peut n'avoir que peu d'importance. Il est utile d'être renseigné là-dessus et, comme le fait A. MÜLLER, de traiter un problème d'hydraulique par la théorie de deux manières, une première fois en supposant un liquide parfait, une deuxième fois en tenant compte de la viscosité, et de confronter ensuite les résultats du calcul avec l'expérience. Toutefois, dans le problème qui fait le sujet de cet article, la viscosité joue un rôle décisif, et si on la néglige, on est conduit à des résultats inacceptables.

## 2. Position du problème.

*Un tube horizontal est raccordé à un réservoir. Le niveau du liquide dans le réservoir étant maintenu constant, le liquide s'écoule tout d'abord avec une vitesse constante. On ferme ensuite progressivement l'extrémité du tube. Etudier comment varient avec le temps la vitesse et la pression du liquide dans le tube.*

L'installation comprend trois parties (fig. 1):

a) un réservoir  $AB$  de section  $S$ ; le liquide qu'il contient a une hauteur constante  $h$ ,

---

<sup>1)</sup> ALOYS MÜLLER, Über die nicht stationären Strömungsphasen in einem starrwandigen Leitungssystem beim Öffnen und Schliessen des Ausflussrohres, *Helv. physiol. Acta*, Vol. 4, fasc. 2 (1946).



b) un tube horizontal  $BC$  de longueur  $l$ , de section circulaire  $s$ , raccordé au réservoir,

c) un dispositif de fermeture  $CD$  de longueur très courte que nous appellerons le *distributeur*<sup>1)</sup>; la section d'ouverture, variable avec le temps, est  $\sigma$ .

Nous admettons que les parois sont parfaitement rigides et que le liquide est incompressible.

La méthode que nous suivrons est la suivante: Nous écrirons d'abord les équations du mouvement en supposant le liquide parfait, et ensuite nous apporterons les corrections nécessitées par la viscosité.

Au-dessus du réservoir, de même qu'à la sortie en  $D$ , règne la pression atmosphérique  $p_0$ . Soit, à l'instant  $t$ ,  $v$  la vitesse du

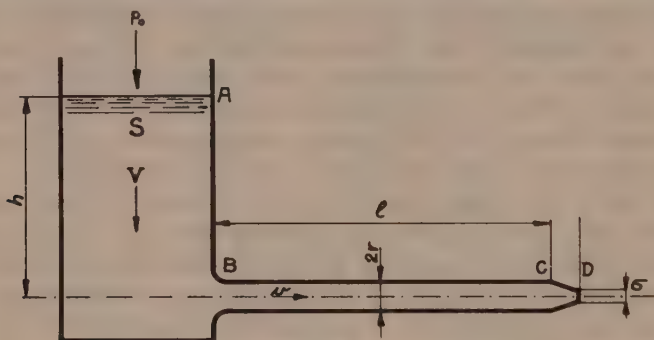


Fig. 1.

liquide dans le tube, c'est-à-dire la vitesse commune des différents filets,  $V$  la vitesse dans le réservoir. L'équation de continuité donne

$$V = \frac{s}{S} v.$$

Dans les expériences on fait toujours en sorte que le rapport des sections  $\frac{s}{S}$  soit négligeable devant l'unité. Dès lors  $V = 0$  et l'on peut admettre que le liquide du réservoir est toujours en repos.

Nous nous proposons d'abord d'établir une équation différentielle se rapportant à la partie  $AB + BC$  du circuit hydraulique.

<sup>1)</sup> Nous adoptons ce terme, quoique peu approprié à la disposition expérimentale, parce qu'il est employé dans le cas des conduites forcées. Voir, par exemple, *Etude théorique et expérimentale sur les coups de bélier dans les conduites forcées*. Rapports de JOUGUET, RATEAU et DE SPARRE. Paris, Dunod et Pinat, 1917. I. Rapport de E. JOUGUET, p. 1—68. — Le problème que traite cet auteur a beaucoup de points de ressemblance avec celui du présent article, mais la méthode d'exposition est différente.

Le principe de l'énergie cinétique pourrait être invoqué ici, mais il est préférable d'employer une méthode plus particulière, d'ailleurs équivalente, qui aura l'avantage de nous faire voir comment peut être introduit le terme correctif dû à la viscosité.

Soit  $p$  la pression du liquide en  $C$ ,  $\frac{p}{\rho g}$  cette pression évaluée en hauteur de liquide ( $\rho$  = densité). Examinons comment cette pression varie de  $A$ , où elle est  $\frac{p_0}{\rho g}$ , jusqu'en  $C$ .

A l'entrée du liquide dans le tube, règne la pression statique  $h$  augmentée de la pression atmosphérique, donc

$$\frac{p_0}{\rho g} + h.$$

Au point de jonction du tube et du réservoir, en  $B$ , il se produit une chute de pression due au fait que le liquide, d'abord en repos, prend de la vitesse. Puisque le liquide est parfait, cette chute de pression, évaluée en hauteur de liquide, est  $\frac{v^2}{2g}$ . Nous avons donc à l'origine du tube la pression

$$\frac{p_0}{\rho g} + h - \frac{v^2}{2g}.$$

Cette même pression règnerait en  $C$ , à l'extrémité du tube, si l'écoulement était stationnaire. Comme il s'agit de l'état variable, nous devons, pour obtenir la pression  $\frac{p}{\rho g}$  régnant en  $C$ , soustraire un terme  $\frac{P}{\rho g}$  dû à l'inertie, de sorte que

$$\frac{p}{\rho g} = \frac{p_0}{\rho g} + h - \frac{v^2}{2g} - \frac{P}{\rho g}.$$

Nous allons expliquer et calculer ce dernier terme.

Lorsqu'une colonne de liquide est en mouvement dans un tube, d'inclinaison quelconque mais de section constante, elle supporte de la part du liquide qui la suit dans ce mouvement une force de pression. Si le mouvement a une accélération, cette force de pression subit une *diminution* égale à  $M \frac{dv}{dt}$ ,  $M$  désignant la masse de liquide qui suit la colonne considérée et  $\frac{dv}{dt}$  son accélération (si je tiens une pierre dans ma main et si je fais mouvoir ma main vers le bas avec une accélération  $g$ , la force de pression sur ma main est diminuée de  $mg$ , c'est-à-dire la pierre me paraît sans poids). Dans notre cas, la masse de liquide à considérer est celle du tube.

En se rappelant que pour une *pression* on ne doit prendre qu'une section de  $1 \text{ cm}^2$ , on a pour la pression d'inertie

$$P = \rho l \cdot 1 \cdot \frac{dv}{dt}, \quad \text{d'où} \quad \frac{P}{\rho g} = \frac{l}{g} \frac{dv}{dt}.$$

Dès lors

$$\frac{p}{\rho g} = \frac{p_0}{\rho g} + h - \frac{v^2}{2g} - \frac{l}{g} \frac{dv}{dt}. \quad (1)$$

### 3. Equation relative au distributeur.

La même méthode peut être appliquée au distributeur  $CD$ . Cette partie du circuit hydraulique est le siège d'une chute de pression due à la variation de vitesse. La section d'ouverture étant  $\sigma$ , la vitesse en  $D$  est  $\frac{s}{\sigma} v$ , de sorte que cette chute de pression évaluée en hauteur de liquide est

$$\frac{s^2}{\sigma^2} \cdot \frac{v^2}{2g} - \frac{v^2}{2g}, \quad \text{ou} \quad \frac{v^2}{2g} \left( \frac{s^2}{\sigma^2} - 1 \right).$$

S'il n'y a pas d'autre pression dont il faille tenir compte, comme nous allons le montrer, nous avons la relation suivante entre la pression  $p$  dans la section  $C$  et  $p_0$  à l'extrémité  $D$

$$\frac{p_0}{\rho g} = \frac{p}{\rho g} - \frac{v^2}{2g} \left( \frac{s^2}{\sigma^2} - 1 \right). \quad (2)$$

L'effet de l'inertie est représenté dans (1) par le terme  $\frac{l}{g} \frac{dv}{dt}$ . Comme le distributeur, dans le dispositif expérimental, est de très courte longueur et se réduit à un obturateur, le terme en question devient alors négligeable. Nous n'avons donc rien à ajouter à l'équation (2)<sup>1)</sup>.

### 4. Modifications nécessitées par la viscosité.

Les équations (1) et (2) ont été obtenues dans l'hypothèse d'un liquide dénué de frottement intérieur et s'écoulant par tranches parallèles. Voyons maintenant comment ces équations peuvent être améliorées pour qu'elles s'appliquent à un liquide visqueux

<sup>1)</sup> Nous admettons ici que le terme d'inertie est négligeable, sans prétendre qu'il soit donné exactement par une formule telle que  $\frac{l}{g} \frac{dv}{dt}$ , car le distributeur constitue un canal dont la paroi change de forme avec le temps. JOUGUET, dans l'ouvrage déjà cité, p. 7, traitant le même problème du distributeur, arrive à une équation équivalente à notre équation (2); mais son argumentation, différente de la nôtre, ne paraît pas décisive. Il renvoie d'ailleurs pour une analyse plus serrée à DE SPARRE.

dont l'écoulement est laminaire. Nous savons qu'à l'état stationnaire le profil des vitesses dans la section du tube est parabolique; dans l'état variable cette distribution est un peu différente. En toute circonstance nous admettrons que dans (1) et (2)  $v$  est la *vitesse moyenne* dans la section.

Nous avons admis que la chute de pression au point de jonction du réservoir et du tube était  $\frac{v^2}{2g}$ . Par suite de la viscosité les filets de liquide prennent des vitesses différentes suivant leur distance à l'axe, et, au bout d'un petit parcours, règne la distribution parabolique ou à peu près, qui se maintient dans le reste du tube. On peut prendre pour cette chute de pression<sup>1)</sup>

$$1,1 \frac{v^2}{g}.$$

Le long du tube, de  $B$  en  $C$ , il se produit une chute de pression que l'on déduit de la loi de Poiseuille. Si  $\Delta p$  est la pression nécessaire pour entretenir en mouvement stationnaire, avec une vitesse moyenne  $v$ , un liquide de coefficient de viscosité  $\mu$  dans un tube de rayon  $r$  et de longueur  $l$ , on a

$$\Delta p = \frac{8 \mu l v}{r^2}.$$

Nous devons donc soustraire à droite de l'équation (1) le terme

$$\frac{8 \mu l v}{g r^2}$$

de sorte que nous avons

$$\frac{p}{g} = \frac{p_0}{g} + h - 1,1 \frac{v^2}{g} - \frac{l}{g} \frac{dv}{dt} - \frac{8 \mu l v}{g r^2}. \quad (3)$$

On peut admettre que, vu la courte longueur du distributeur, l'équation (2) ne doit subir aucune correction.

### 5. Les équations de la vitesse et de la pression.

Nos équations (3) et (2) peuvent s'écrire de la façon suivante:

$$2l \frac{dv}{dt} + 2,2 v^2 + \frac{16 \mu l v}{g r^2} - 2 g h = \frac{2(p_0 - p)}{g} \quad (4)$$

$$\left( \frac{s^2}{\sigma^2} - 1 \right) v^2 = \frac{2(p - p_0)}{g}. \quad (5)$$

<sup>1)</sup> Sur la correction de Hagenbach consulter S. ERK, *Über Zähigkeitsmessungen nach der Kapillarmethode*, Zeit. für techn. Phys., 1929, p. 454. — A. MÜLLER, *Abhandlungen zur Mechanik der Flüssigkeiten mit besonderer Berücksichtigung der Hämodynamik*. Freiburg (Schweiz) und Leipzig, 1936, p. 25—37.



Nous introduirons les constantes

$$v_0 = \sqrt{2gh}, \quad \beta = \frac{8\mu l}{\rho r^2 v_0} \quad (6)$$

et les nouvelles variables

$$\lambda = \frac{\sigma}{s}, \quad H = \frac{p - p_0}{\rho g}$$

de sorte que nos équations pourront s'écrire

$$2l \frac{dv}{dt} + 2,2 v^2 + 2\beta v_0 v - v_0^2 = -2gH \quad (7)$$

$$\left(\frac{1}{\lambda^2} - 1\right) v^2 = 2gH \quad (8)$$

$v_0$  est la vitesse de régime qu'on aurait dans le cas d'un liquide parfait;  $\beta$  est une grandeur proportionnelle au coefficient de viscosité;  $\lambda$  est une fraction qui peut varier de 0 à 1 et peut s'appeler le *degré d'ouverture* du distributeur.

$$\begin{array}{ll} \text{Pour } \sigma = 0, & \lambda = 0 \\ ,, \quad \sigma = s, & \lambda = 1. \end{array}$$

$H$  est la différence de pression entre l'extrémité du tube et la pression atmosphérique, évaluée en hauteur de liquide; nous appellerons  $H$  tout simplement la *pression*.

On élimine  $H$  des équations (7) et (8) par addition:

$$2l \frac{dv}{dt} + \left(\frac{1}{\lambda^2} + 1,2\right) v^2 + 2\beta v_0 v - v_0^2 = 0. \quad (9)$$

Cette équation différentielle contient trois variables  $v$ ,  $\lambda$ ,  $t$  de sorte qu'il nous faudra admettre une relation entre  $\lambda$  et  $t$ . Nous admettrons que le *degré d'ouverture* est une fonction linéaire du temps et nous poserons

$$\lambda = 1 - \frac{t}{T}, \quad d\lambda = -\frac{dt}{T} \quad (10)$$

$T$  est la durée totale de fermeture. A l'instant initial  $t = 0$ , l'ouverture est complète,  $\lambda = 1$ ,  $\sigma = s$ . En substituant  $dt = -T d\lambda$  dans (9) on obtient

$$\frac{2l}{T} \frac{dv}{d\lambda} - \left(\frac{1}{\lambda^2} + 1,2\right) v^2 - 2\beta v_0 v + v_0^2 = 0 \quad (11)$$

$$H = \frac{v^2}{2g} \left(\frac{1}{\lambda^2} - 1\right) \quad (12)$$

(11) est l'équation différentielle de la vitesse; (12) est la formule de la *pression*.

### 6. Cas de l'état stationnaire.

Avant d'entreprendre l'intégration de l'équation différentielle considérons l'état *stationnaire*, alors que le distributeur est grand ouvert. La vitesse est constante,  $v = v_1$ . On fera donc dans l'équation (11)

$$\frac{dv}{d\lambda} = 0, \quad \lambda = 1.$$

Il vient

$$2,2v_1^2 + 2\beta v_0 v_1 - v_0^2 = 0.$$

Si pour ce régime on connaît  $\frac{v_1}{v_0}$  on peut calculer  $\beta$

$$\beta = \frac{1 - 2,2 \left( \frac{v_1}{v_0} \right)^2}{2 \left( \frac{v_1}{v_0} \right)} \quad (13)$$

Nous nous baserons sur les données suivantes correspondant à une expérience de A. MÜLLER

$$\begin{array}{lll} h = 69,5 \text{ cm} & r = 1,1 \text{ cm} & l = 380,7 \text{ cm} \\ T = 1 \text{ sec} & \varrho = 1,1827 & v_1 = 98,8 \text{ cm/sec} \end{array}$$

On calcule d'après (6)

$$\begin{aligned} v_0 &= \sqrt{2 \cdot 981 \cdot 69,5} = \underline{369,3} \\ \frac{v_1}{v_0} &= \frac{98,8}{369,3} = 0,2676 \end{aligned} \quad (14)$$

d'après (13)

$$\beta = \frac{1 - 2,2 \cdot (0,2676)^2}{2 \cdot 0,2676} = \underline{1,5744}$$

d'après (6)

$$\mu = \frac{\varrho r^2 v_0 \beta}{8l} = \frac{1,1827 \cdot (1,1)^2 \cdot 369,3 \cdot 1,5744}{8 \cdot 380,7} = \underline{0,273}.$$

Nous utiliserons ces valeurs numériques lorsque l'équation différentielle sera intégrée.

### 7. Intégration de l'équation différentielle de la vitesse.

Pour ramener l'équation (11)

$$\frac{2l}{T} \cdot \frac{dv}{d\lambda} - \left( \frac{1}{\lambda^2} + 1,2 \right) v^2 - 2\beta v_0 v + v_0^2 = 0$$

à une forme intégrable, il faut faire subir aux variables diverses transformations.

Première transformation. Nous poserons tout d'abord

$$\frac{2l}{Tv_0} = n \quad (15)$$

et ensuite nous ferons le changement de fonction

$$v = \frac{v_0}{\beta + z} \quad (16)$$

$z$  étant la nouvelle fonction.

$$\frac{dv}{d\lambda} = - \frac{v_0}{(\beta + z)^2} \frac{dz}{d\lambda}.$$

En remplaçant  $v$  et  $\frac{dv}{d\lambda}$  par leurs expressions dans (11), il vient.

$$-nv_0 \cdot \frac{v_0}{(\beta + z)^2} \frac{dz}{d\lambda} - \left( \frac{1}{\lambda^2} + 1,2 \right) \frac{v_0^2}{(\beta + z)^2} - 2\beta v_0 \frac{v_0}{\beta + z} + v_0^2 = 0.$$

On résout par rapport à  $\frac{dz}{d\lambda}$  et on obtient

$$\frac{dz}{d\lambda} = - \frac{1,2 + \beta^2}{n} - \frac{1}{n\lambda^2} + \frac{z^2}{n}. \quad (17)$$

Deuxième transformation. L'équation (17) est de la forme

$$\frac{dz}{d\lambda} = P + Qz + Rz^2$$

où  $P, Q, R$  sont des fonctions de la variable  $\lambda$

$$P = - \frac{1,2 + \beta^2}{n} - \frac{1}{n\lambda^2}, \quad Q = 0, \quad R = \frac{1}{n}.$$

Il existe pour cette forme d'équation une transformation classique par laquelle on obtiendra une équation linéaire, mais du second ordre. Cette transformation est la suivante

$$z = - \frac{1}{R} \frac{1}{u} \frac{du}{d\lambda}$$

ou, puisque  $R = \frac{1}{n}$

$$z = - \frac{n}{u} \frac{du}{d\lambda}, \quad (18)$$

$u$  est une nouvelle fonction. On déduit de (18) par différentiation

$$\frac{dz}{d\lambda} = \frac{n}{u^2} \left( \frac{du}{d\lambda} \right)^2 - \frac{n}{u} \frac{d^2u}{d\lambda^2}.$$

Substituant dans (17), il vient

$$\begin{aligned} \frac{n}{u^2} \left( \frac{du}{d\lambda} \right)^2 - \frac{n}{u} \frac{d^2u}{d\lambda^2} &= - \frac{1,2 + \beta^2}{n} - \frac{1}{n\lambda^2} + \frac{1}{n} \cdot \frac{n^2}{u^2} \left( \frac{du}{d\lambda} \right)^2 \\ \frac{d^2u}{d\lambda^2} - \left( \frac{1,2 + \beta^2}{n^2} + \frac{1}{n^2\lambda^2} \right) u &= 0. \end{aligned} \quad (19)$$

Troisième transformation. On introduit une autre variable indépendante  $x$  reliée à  $\lambda$  par

$$\lambda = \frac{nx}{\sqrt{1, 2 + \beta^2}}, \quad \text{ou} \quad x = \frac{\sqrt{1, 2 + \beta^2}}{n} \lambda. \quad (20)$$

On déduit, par différentiation

$$\frac{du}{d\lambda} = \frac{du}{dx} \frac{\sqrt{1, 2 + \beta^2}}{n}, \quad \frac{d^2u}{d\lambda^2} = \frac{d^2u}{dx^2} \frac{1, 2 + \beta^2}{n^2}.$$

Substituant dans (19), il vient

$$\frac{d^2u}{dx^2} - \left(1 + \frac{1}{n^2 x^2}\right) u = 0. \quad (21)$$

Quatrième transformation. Bien qu'il paraisse que l'équation obtenue soit aussi simple qu'on puisse le souhaiter, il convient de lui faire subir une transformation, qui est la suivante

$$u = x^{\frac{1}{2}} y. \quad (22)$$

On déduit

$$\begin{aligned} \frac{du}{dx} &= \frac{1}{2} x^{-\frac{1}{2}} y + x^{\frac{1}{2}} \frac{dy}{dx} \\ \frac{d^2u}{dx^2} &= -\frac{1}{4} x^{-\frac{3}{2}} y + x^{-\frac{1}{2}} \frac{dy}{dx} + x^{\frac{1}{2}} \frac{d^2y}{dx^2}. \end{aligned}$$

En substituant dans (21) on obtient, après quelques calculs,

$$\frac{d^2y}{dx^2} + \frac{1}{x} \frac{dy}{dx} - \left(1 + \frac{\frac{1}{n^2} + \frac{1}{4}}{x^2}\right) y = 0. \quad (23)$$

Cette équation peut être ramenée à une équation de Bessel. L'équation différentielle de BESSEL a la forme suivante

$$\frac{d^2y}{dx^2} + \frac{1}{x} \frac{dy}{dx} + \left(1 - \frac{p^2}{x^2}\right) y = 0. \quad (24)$$

Une telle équation, si  $p$  n'est pas un nombre entier a deux solutions particulières indépendantes  $I_p(x)$  et  $I_{-p}(x)$  qui, abstraction d'un facteur constant sans intérêt pour nous, ont la forme suivante<sup>1)</sup>

$$\begin{aligned} I_p(x) &= x^p \left[ 1 - \frac{x^2}{2^2 \cdot 1! (p+1)} + \frac{x^4}{2^4 \cdot 2! (p+1)(p+2)} - \dots \right] \\ I_{-p}(x) &= x^{-p} \left[ 1 - \frac{x^2}{2^2 \cdot 1! (-p+1)} + \frac{x^4}{2^4 \cdot 2! (-p+1)(-p+2)} - \dots \right] \end{aligned} \quad (25)$$

<sup>1)</sup> Voir par exemple A. R. FORSYTH, *Lehrbuch der Differentialgleichungen*, deutsch von W. JACOBSTHAL, II. Aufl., p. 182—185 (1912).



Il est possible de ramener notre équation (23) à une équation de Bessel en l'écrivant comme suit

$$\frac{d^2 y}{d(ix)^2} + \frac{1}{ix} \frac{dy}{d(ix)} + \left[ 1 - \frac{\frac{1}{n^2} + \frac{1}{4}}{(ix)^2} \right] y = 0.$$

C'est une équation de BESSEL pour la variable  $ix$ , donc vérifiée par les fonctions  $I_p(ix)$  et  $I_{-p}(ix)$ , où  $p$  est donné par

$$p = \sqrt{\frac{1}{n^2} + \frac{1}{4}}. \quad (26)$$

La solution générale de notre équation différentielle (23) a donc pour expression,  $A_1$  et  $B_1$  désignant deux constantes arbitraires

$$y = A_1 I_p(ix) + B_1 I_{-p}(ix).$$

### 8. Solution du problème.

Connaissant  $y$ , nous reprenons la chaîne des transformations dans l'ordre inverse. D'après (22) on a

$$u = A_1 \sqrt{x} I_p(ix) + B_1 \sqrt{x} I_{-p}(ix). \quad (27)$$

La formule de transformation (18) peut s'écrire, du moment que d'après (20)

$$\begin{aligned} \frac{du}{d\lambda} &= \frac{du}{dx} \frac{\sqrt{1,2+\beta^2}}{n}, \\ z &= -\sqrt{1,2+\beta^2} \frac{1}{u} \frac{du}{dx}. \end{aligned} \quad (28)$$

Enfin, reprenant (16), nous avons la vitesse  $v$

$$v = \frac{v_0}{\beta + z}. \quad (29)$$

Ces trois formules (27), (28) et (29) auxquelles il faut joindre (20), savoir

$$\lambda = \frac{nx}{\sqrt{1,2+\beta^2}}. \quad (30)$$

résolvent théoriquement notre problème.

Les constantes  $A_1$  et  $B_1$  seront déterminées par la condition initiale: Au temps  $t=0$ , pour lequel on a  $\lambda=1$ ,  $x_1 = \frac{\sqrt{1,2+\beta^2}}{n}$ , l'écoulement est celui du régime stationnaire et se fait avec une vitesse  $v_1$  que l'on connaît ou que l'on sait calculer (n° 6). Cette valeur de  $v_1$  introduite dans (29) permet de déterminer la valeur

correspondante  $z_1$  de la variable  $z$ . Si ensuite dans (28) on fait  $x = x_1$  et  $z = z_1$  on obtient

$$z_1 = -\sqrt{1,2 + \beta^2} \frac{1}{u} \frac{du}{dx} \Big|_{x=x_1}.$$

Contrairement aux apparences,  $\frac{1}{u} \frac{du}{dx}$ , calculable à l'aide de (27), ne contient que le rapport  $\frac{A_1}{B_1}$ , donc une seule constante arbitraire; cette dernière équation permet de la déterminer. C'est pourquoi on pourrait supposer d'emblée  $B_1 = 1$ .

### 9. Le développement en série de $u$ et $\frac{du}{dx}$ .

Les tables très connues de JAHNKE et EMDÉ permettent de calculer les fonctions de BESSEL  $I_p(x)$  même pour les valeurs imaginaires de l'argument. Malheureusement ces tables sont établies pour les valeurs entières de  $p$ : 0, 1, 2, ... et ne sont d'aucune utilité pour nous, car dans tous les cas pratiques  $n$ , donné par (15), est plus grand que 2 et en conséquence

$$p = \sqrt{\frac{1}{n^2} + \frac{1}{4}}$$

ne peut dépasser 0,71. C'est pourquoi nous avons été dans l'obligation d'écrire les séries et de calculer  $u$  et  $\frac{du}{dx}$  d'après ces séries.

Si, en se basant sur (25), nous formons  $I_p(ix)$  et  $I_{-p}(ix)$  et qu'ensuite nous utilisons les séries obtenues pour former  $u$  d'après (27), les facteurs constants  $A_1$  et  $B_1$  seront multipliés, l'un par  $i^p$ , l'autre par  $i^{-p}$ . On désignera par  $A$  et  $B$  deux nouvelles constantes arbitraires, mais on peut prendre  $B = 1$ , d'après une remarque du n° 8. Dès lors

$$u = A x^{p+\frac{1}{2}} \left[ 1 + \frac{x^2}{2^2 \cdot 1! (p+1)} + \frac{x^4}{2^4 \cdot 2! (p+1)(p+2)} + \dots \right] + x^{-p+\frac{1}{2}} \left[ 1 + \frac{x^2}{2^2 \cdot 1! (-p+1)} + \frac{x^4}{2^4 \cdot 2! (-p+1)(-p+2)} + \dots \right] \quad (31)$$

$$\frac{du}{dx} = A x^{p-\frac{1}{2}} \left[ \left( p + \frac{1}{2} \right) + \frac{\left( p+2+\frac{1}{2} \right) x^2}{2^2 \cdot 1! (p+1)} + \frac{\left( p+4+\frac{1}{2} \right) x^4}{2^4 \cdot 2! (p+1)(p+2)} + \dots \right] + x^{-p-\frac{1}{2}} \left[ \left( -p + \frac{1}{2} \right) + \frac{\left( -p+2+\frac{1}{2} \right) x^2}{2^2 \cdot 1! (-p+1)} + \frac{\left( -p+4+\frac{1}{2} \right) x^4}{2^4 \cdot 2! (-p+1)(-p+2)} + \dots \right] \quad (32)$$

Pour pouvoir utiliser ces séries il est nécessaire de connaître numériquement les coefficients. On se reportera au n° 6 où ont été données les valeurs des constantes fondamentales.

$$\text{Calcul de } n \text{ (15): } n = \frac{2l}{Tv_0} = \frac{2 \cdot 380,7}{1 \cdot 369,3} = 2,062 \quad (33)$$

$$\text{Calcul de } p \text{ (26): } p = \sqrt{\frac{1}{n^2} + \frac{1}{4}} = \sqrt{\frac{1}{(2,062)^2} + \frac{1}{4}} = 0,6966. \quad (34)$$

En utilisant cette valeur de  $p$  on peut calculer les coefficients qui interviennent dans les séries (31) et (32) et on trouve:

$$u = Ax^{1,1966}(1 + a_2 x^2 + a_4 x^4 + \dots) + x^{-0,1966}(1 + b_2 x^2 + b_4 x^4 + \dots) \quad (35)$$

$$\frac{du}{dx} = A x^{0,1966}(a'_0 + a'_2 x^2 + a'_4 x^4 + \dots) + x^{-1,1966}(b'_0 + b'_2 x^2 + b'_4 x^4 + \dots) \quad (36)$$

$a_2 = 0,14738$	$b_2 = 0,82390$	$a'_0 = 1,19657$	$b'_0 = -0,19657$
$a_4 = 0,00683$	$b_4 = 0,07901$	$a'_2 = 0,47104$	$b'_2 = 1,48590$
$a_6 = 0,00015$	$b_6 = 0,00286$	$a'_4 = 0,03550$	$b'_4 = 0,30053$
	$b_8 = 0,00005$	$a'_6 = 0,00111$	$b'_6 = 0,01659$
		$a'_8 = 0,00002$	$b'_8 = 0,00042$

Voici enfin la valeur de  $A$  que nous allons bientôt calculer

$$A = -1,2498.$$

#### 10. Détermination de la constante $A$ .

Au temps  $t = 0$ , l'ouverture est totale,  $\lambda = 1$ . Si donc dans la formule (30) on fait  $\lambda = 1$  on peut calculer la valeur correspondante de  $x$

$$x_1 = \frac{\sqrt{1,2 + \beta^2}}{n}.$$

Puisque  $\beta = 1,5744$  (14) et  $n = 2,062$  (33), on a  $\sqrt{1,2 + \beta^2} = 1,918$

$$x_1 = \frac{1,918}{2,062} = 0,9302.$$

Pour cette valeur  $x = x_1 = 0,9302$  les séries (35) et (36) donnent

$$u_1 = 1,03876 A + 1,79937$$

$$\left. \frac{du}{dx} \right|_{x=x_1} = 1,60837 A + 1,4450$$

A l'instant initial, la variable  $z$ , donnée par (28), a pour expression

$$z_1 = -\sqrt{1,2 + \beta^2} \frac{1}{u} \left. \frac{du}{dx} \right|_{x=x_1} = -1,918 \frac{1,60837 A + 1,4450}{1,03876 A + 1,79937}$$

D'autre part  $z_1$  peut être calculé au moyen de (16) en faisant  $v = v_1$

$$z_1 = \frac{v_0}{v_1} - \beta = \frac{369,3}{98,8} - 1,5744 = 2,16307.$$

En égalant ces deux expressions de  $z_1$  on obtient une équation de laquelle on peut tirer  $A$

$$-1,918 \frac{1,60837 A + 1,4450}{1,03876 A + 1,79937} = 2,16307.$$

On trouve

$$A = -1,2498.$$

### 11. Courbe de la vitesse et courbe de la pression.

Donnons un exemple du calcul de la vitesse et de la pression correspondant à une ouverture déterminée, par exemple  $\lambda = 0,4$ .

On obtient  $x$  par la formule (20)

$$x = \frac{\sqrt{1,2 + \beta^2}}{n} \lambda = \frac{1,918}{2,062} \cdot 0,4 = 0,3721.$$

Les séries (35) et (36) permettent, pour cette valeur de  $x$ , de calculer  $u$  et  $\frac{du}{dx}$ . On trouve

$$u = 0,96414 \quad \frac{du}{dx} = -1,25036.$$

On calcule  $z$  par (28)

$$z = -\sqrt{1,2 + \beta^2} \frac{1}{u} \frac{du}{dx} = -1,918 \frac{-1,25036}{0,96414} = 2,4872.$$

Calcul de la vitesse (29)

$$v = \frac{v_0}{\beta + z} = \frac{369,3}{1,5744 + 2,4872} = \underline{90,92}.$$

Calcul de la pression (12)

$$H = \frac{v^2}{2g} \left( \frac{1}{\lambda^2} - 1 \right) = \frac{(90,92)^2}{2 \cdot 981} \left( \frac{1}{0,4^2} - 1 \right) = \underline{22,12}.$$

C'est ainsi qu'ont été calculés les nombres qui figurent dans les 2e et 4e colonnes du Tableau (p. 281).

La vitesse  $v$  et la pression  $H$  étant maintenant des fonctions connues de  $\lambda$  ou de  $t$ , on peut les représenter graphiquement (fig. 2). En abscisse on a porté le temps  $t$  et l'on a  $AB = T$ . En adoptant une seconde échelle pour laquelle  $AB = 1$ , on peut lire pour chaque  $t$  la valeur correspondante du degré d'ouverture  $\lambda$ ; cette variable est comptée positivement vers la gauche, à partir de l'origine  $B$ .



## 12. Pression maximum et coup de bélier.

La valeur maximum  $H_m$  de la pression  $H$  a lieu à la fin de la fermeture, soit pour  $\lambda = 0$ . Nous ne pouvons sans étude préalable appliquer nos formules à ce cas puisque, pour  $x = 0$ , on a d'après (35) et (36)  $u = \infty$ ,  $\frac{du}{dx} = \infty$ .

Pour  $x$  tendant vers zéro (31) et (32) se réduisent à deux termes

$$u = Ax^{p+\frac{1}{2}} + x^{-p+\frac{1}{2}}$$

$$\frac{du}{dx} = A\left(p + \frac{1}{2}\right)x^{p-\frac{1}{2}} - \left(p - \frac{1}{2}\right)x^{-p-\frac{1}{2}}.$$

On notera que  $p > \frac{1}{2}$ , de sorte que les exposants  $p + \frac{1}{2}$  et  $p - \frac{1}{2}$  sont positifs. Les termes  $Ax^{p+\frac{1}{2}}$  et  $A(p + \frac{1}{2})x^{p-\frac{1}{2}}$  tendant vers zéro avec  $x$ , les seconds termes sont prépondérants, de sorte que pour des valeurs de  $x$  voisines de zéro, nous avons

$$u = x^{-p+\frac{1}{2}}, \quad \frac{du}{dx} = -\left(p - \frac{1}{2}\right)x^{-p-\frac{1}{2}}$$

$$\frac{1}{u} \frac{du}{dx} = -\left(p - \frac{1}{2}\right) \frac{x^{-p-\frac{1}{2}}}{x^{-p+\frac{1}{2}}} = -\left(p - \frac{1}{2}\right) \frac{1}{x}$$

$$z = -\sqrt{1,2+\beta^2} \frac{1}{u} \frac{du}{dx} = \sqrt{1,2+\beta^2} \left(p - \frac{1}{2}\right) \frac{1}{x}$$

et puisque  $x = \frac{\sqrt{1,2+\beta^2}}{n} \lambda$ ,

$$z = \frac{n\left(p - \frac{1}{2}\right)}{\lambda}$$

$$v = \frac{v_0}{\beta + z} = \frac{v_0}{\beta + \frac{n\left(p - \frac{1}{2}\right)}{\lambda}} = \frac{v_0 \lambda}{\beta \lambda + n\left(p - \frac{1}{2}\right)}$$

$$\lim_{\lambda=0} \frac{v}{\lambda} = \frac{v_0}{n\left(p - \frac{1}{2}\right)}.$$

Connaissant la limite du rapport  $\frac{v}{\lambda}$ , nous pouvons calculer la pression  $H$  d'après (12)

$$H = \frac{v^2}{2g} \left( \frac{1}{\lambda^2} - 1 \right) = \frac{1}{2g} \left( \frac{v}{\lambda} \right)^2 (1 - \lambda^2).$$

Pour  $\lambda = 0$ , on a

$$H_m = \frac{1}{2g} \frac{v_0^2}{n^2 \left(p - \frac{1}{2}\right)^2}$$

Enfin, puisque  $v_0^2 = 2gh$

$$H_m = \frac{h}{n^2 \left(p - \frac{1}{2}\right)^2}. \quad (37)$$

Telle est la valeur maximum de la pression; mais nous pouvons donner à cette expression une autre forme, car nous pouvons montrer qu'on a l'identité

$$n^2 \left( p - \frac{1}{2} \right)^2 = \frac{p - \frac{1}{2}}{p + \frac{1}{2}}.$$

En effet, on déduit successivement de cette équation

$$n^2 \left( p - \frac{1}{2} \right) = \frac{1}{p + \frac{1}{2}}$$

$$n^2 \left( p^2 - \frac{1}{4} \right) = 1.$$

Cette égalité a lieu puisque  $p^2 = \frac{1}{n^2} + \frac{1}{4}$  d'après (26).

Tableau.

Ouverture $\lambda$	Vitesse $v$		Pression $H$	
	expérim.	théor.	expérim.	théor.
1,0	98,8	98,80	0	0
0,9	98,8	98,65	0	1,14
0,8	98,8	98,24	1	2,77
0,7	98,5	97,44	2	5,04
0,6	98,0	96,15	5	8,38
0,5	96,7	94,12	11	13,55
0,4	94,5	90,92	25	22,12
0,3	89,5	85,55	45	37,72
0,2	79,8	75,80	95	70,29
0,1	59,5	55,20	161	153,70
0	0	0	248	423,07

Nous avons donc l'expression

$$H_m = \frac{p + \frac{1}{2}}{p - \frac{1}{2}} h, \quad \text{avec} \quad p = \sqrt{\frac{1}{n^2} + \frac{1}{4}}. \quad (38)$$

Passons à l'évaluation numérique de  $H_m$ .

$$p = 0,6966 \quad (34) \quad h = 69,5$$

$$H_m = \frac{0,6966 + 0,5}{0,6966 - 0,5} \cdot 69,5 = \underline{\underline{423,1}}.$$

On appelle d'ordinaire *coup de béliet* le rapport  $\frac{H_m - h}{h}$ . L'examen de la formule (38) montre que le *coup de béliet* est indépendant de la viscosité. Rappelons que la viscosité est signalée

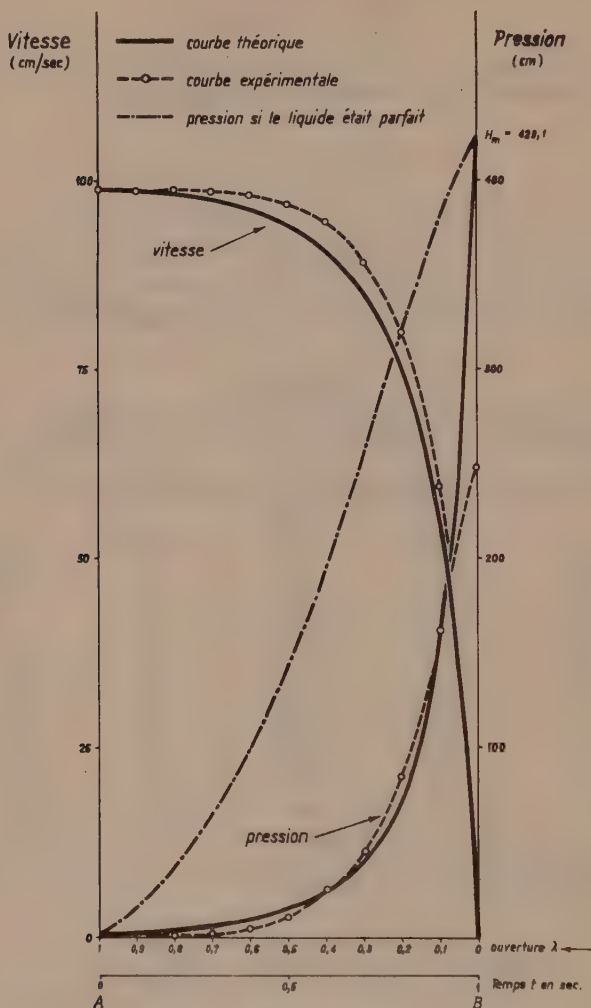


Fig. 2.

dans nos formules par la présence de  $\beta$  et du nombre 1,2; ce dernier a été introduit par la correction de Hagenbach, qui est elle-même une conséquence de la viscosité. Or  $H_m$  ne contient ni l'une ni l'autre de ces constantes.

Ce résultat, assez surprenant, est incontestable. Nous en tirons la conclusion que le même problème traité en admettant un liquide parfait donnerait pour  $H_m$  l'expression même que nous venons de trouver<sup>1)</sup>.

### 13. Vérification expérimentale.

Comme nous l'avons dit au début, des expériences répétées ont été faites par A. MÜLLER avec les données mêmes que nous avons utilisées pour nos calculs. Le plus grand soin a été apporté, tant pour constituer une installation irréprochable que pour enregistrer correctement la vitesse et la pression.

La jonction tube—réservoir a été soignée tout particulièrement; afin d'éviter la turbulence en cet endroit, le tube à son origine était judicieusement évasé et ainsi cette jonction adoucie. L'extrémité du tube passait progressivement de la forme circulaire à la forme carrée, de sorte que, l'obturateur se déplaçant avec une vitesse constante, la fermeture était une fonction linéaire du temps.

Le Tableau donne pour diverses ouvertures  $\lambda$  variant de 1 à 0 les valeurs de la vitesse moyenne et de la pression à l'extrémité du tube que nous avons calculées et celles qui ont été observées<sup>2)</sup>.

Ce tableau a servi à construire les courbes de la fig. 2. On remarquera que la vitesse varie très peu tout d'abord, puis, vers la fin de la fermeture, tombe rapidement à zéro. Corrélativement la pression (plus exactement, excès de la pression du liquide sur la pression atmosphérique) est presque nulle durant une grande partie de la période de fermeture, puis s'élève brusquement vers la fin.

Pour servir de comparaison et rendre visible l'influence de la viscosité on a tracé également la courbe qui figurerait les variations de la pression dans le cas théorique d'un liquide parfait.

Nous ne trouvons d'écart entre la théorie et l'expérience qui soit digne de remarque que pour la pression finale; celle qui est observée est notablement plus faible que la valeur calculée  $H_m$ . A notre avis, les approximations que nous avons faites dans nos calculs ne sont responsables de cet écart que dans une faible

<sup>1)</sup> JOUGUET (ouvrage cité, p. 10) trouve pour le coup de bélier dans les conduites forcées la formule  $\delta_m = n \left( \frac{n}{2} + \sqrt{\frac{n^2}{4} + 1} \right)$ . Du moment que  $\delta_m$  est égal à  $\frac{H_m - h}{h}$  et que  $n$  a la même signification que dans notre étude, il est aisé de vérifier que la formule de JOUGUET est identique à notre formule (38).

<sup>2)</sup> Voir l'article déjà cité de A. MÜLLER, Tableau II.



mesure. A. MÜLLER estime plutôt que, par suite de l'élasticité des parois du tube et de la compressibilité du liquide, dont il n'a pas été tenu compte, l'onde de pression voyageant avec amortissement a été cause de l'atténuation observée. On comprend que cette perturbation ne soit appréciable qu'à la fin de la phase, au moment où la pression a pris de grandes valeurs. Des expériences sont en cours pour élucider ce point.

Fribourg (Suisse), Institut de physiologie de l'Université.

---

# Effet de la température sur la diffusion neutron-proton

par A. Gibert\*) et J. Rossel.

(29. V. 1946.)

## 1. Introduction.

La théorie de la diffusion des neutrons lents par des protons liés a été traitée d'abord par FERMI<sup>1)</sup>, puis par BETHE<sup>2)</sup> et ARLEY<sup>3)</sup>. Dans le cas limite de neutrons d'énergie nulle ou quand on peut considérer le proton comme lié rigidement, on prévoit que la section efficace de diffusion est proportionnelle au carré de la masse réduite du système neutron-molécule hydrogénée. Si le proton est lié à une masse infinie, la section efficace prend une valeur maximum  $\sigma_{\infty}$ . Ce maximum,  $\sigma_{\infty}$ , est relié à la section efficace de diffusion des neutrons par les protons libres,  $\sigma_H$ , par la relation  $\sigma_{\infty} = 4\sigma_H$ . Ces résultats semblent être confirmés expérimentalement, en particulier par les mesures de CARROL<sup>4)</sup> sur l'influence des liaisons moléculaires.

La diffusion par les molécules gazeuses présente deux cas simples extrêmes: 1) si l'énergie des neutrons est grande relativement à l'énergie de liaison de la molécule, les protons peuvent être considérés comme libres; 2) si par contre l'énergie des neutrons n'est suffisante pour exciter ni les vibrations ni les rotations de la molécule les protons se comportent comme des points matériels susceptibles seulement de translations. Dans ces deux cas limites on peut donc éliminer l'influence des liaisons chimiques.

Le cas intermédiaire complexe où il faut tenir compte des liaisons du proton caractéristiques de la molécule hydrogénée a été étudié par SACHS et TELLER<sup>5)</sup>. Pour pouvoir résoudre effectivement ce problème, ces auteurs ont dû se borner au cas particulier où l'énergie des neutrons ne suffit pas à exciter les vibrations de la molécule mais est assez grande pour que le mouvement de rotation de la molécule puisse être traité classiquement.

Indépendamment de ces considérations, il faut tenir compte de l'agitation thermique des molécules quand le corps diffuseur

---

\*) Boursier de l'Etat portugais (Instituto para a Alta Cultura).

se trouve à l'état gazeux<sup>6</sup>). Si l'on n'envisage que des neutrons monocinétiques de vitesse  $v$ , on tiendra compte de cet effet en posant

$$\sigma_{\text{eff}}(v) = \frac{1}{v} \int |\vec{v} - \vec{u}| \sigma(|\vec{v} - \vec{u}|) N(\vec{u}) d\vec{u}$$

où  $N(\vec{u})d\vec{u}$  est la distribution de vitesses des molécules du gaz,  $\sigma(|\vec{v} - \vec{u}|)$  la section efficace théorique et  $\sigma_{\text{eff}}(v)$  la section efficace mesurée. La supposition que  $\sigma$  est indépendante de la vitesse permet l'intégration et conduit au facteur de correction qu'il faut appliquer à  $\sigma_{\text{eff}}$  pour avoir le vrai  $\sigma$ .

En réalité  $\sigma$  n'est pas indépendant de la vitesse. L'approximation de SACHS et TELLER tient compte de ce fait et permet le calcul explicite du rapport  $\bar{\sigma}/\sigma_H$  (où  $\bar{\sigma}$  est la section efficace moyenne de diffusion d'un proton lié) dans les deux cas suivants: a) neutrons monocinétiques, b) courant de neutrons du type

$$P_n^2 \exp(-P_n^2/2mkT_n) dP_n,$$

où  $P_n$  est le moment du neutron. On obtient ainsi des formules qui mettent en évidence la façon dont le rapport  $\sigma/\sigma_H$  dépend 1) de la température du gaz diffuseur, ou plus exactement du rapport  $T/T_n$ , de la température  $T$  du gaz à la température  $T_n = \frac{2}{3} \frac{E_n}{k}$  des neutrons d'énergie moyenne  $E_n$ , 2) de la structure de la molécule.

Le cas b) est susceptible d'un contrôle expérimental dans les conditions courantes où les neutrons lents employés présentent une répartition de vitesses voisine de la distribution théorique envisagée. Par conséquent, pour autant qu'il sera possible de réaliser les conditions expérimentales exigées par les hypothèses de la théorie, l'étude de l'effet de la température dans la diffusion des neutrons lents par des molécules hydrogénées gazeuses semble devoir être intéressante pour les trois raisons suivantes:

a) elle constituera un contrôle du degré d'approximation de la théorie de SACHS et TELLER,

b) elle permettra d'établir, dans les conditions expérimentales réalisées, la grandeur de cet effet de température,

c) si l'expérience semble confirmer suffisamment la théorie la mesure pourra fournir, ainsi que le suggèrent SACHS et TELLER, une contribution au problème de la valeur de  $\sigma_H$ , par la combinaison des résultats expérimentaux et théoriques.

En effet, la théorie permet de calculer  $\sigma/\sigma_H$  à différentes températures; si l'on mesure  $\bar{\sigma}$  à ces mêmes températures, il sera pos-

sible d'en déduire une valeur moyenne de  $\sigma_H$  avec une assez bonne précision. On sait que les valeurs connues de  $\sigma_H$ , soit purement expérimentales, soit semi-théoriques, présentent entre elles une dispersion qui dépasse largement les erreurs acceptables. Le tableau suivant donne un résumé chronologique des valeurs trouvées pour  $\sigma_H$  et des méthodes employées dont nous avons connaissance.

Auteurs (réf.)	Année	Méthode	Valeur
7)	1936	diffusion dans la paraffine . . . . .	11,5
2)	1937	calculée . . . . .	14
8)	1938	extrapolé . . . . .	16,5
9)	1939	neutrons rés. I et Ag dans l'eau . .	$14,8 \pm 0,8$
10)	1939	neutrons rés. Rh dans la paraffine . .	$20 \pm 2$
11)	1939	calculée d'après <sup>15)</sup> . . . . .	$20 \pm 2$
12)	1940	neutrons rés. Rh . . . . .	14,4
6)	1940	calculée à partir de <sup>16)</sup> . . . . .	16,6
13)	1940	neutrons rés. In et Ag dans la paraffine	20
14)	1941	neutrons rés. In et I dans le cétane .	$21 \pm 1$

D'autre part il peut être intéressant d'essayer de déterminer l'influence de l'état d'aggrégation en comparant la diffusion des neutrons dans les deux phases, gazeuse et liquide, de l'hydrogène dans les mêmes conditions de température et pour des neutrons possédant des distributions d'énergie identiques. En effet, les mesures effectuées jusqu'ici, à l'occasion de recherches sur l'ortho et le parahydrogène<sup>15)16)</sup>, ne permettent pas cette comparaison. Ainsi, à 20° K, les seules valeurs disponibles se rapportent à des neutrons C de 300° K (état liquide:  $\sigma = 24,0$ ) et à des neutrons monocinétiques de 20° K (état gazeux:  $\sigma = 38,15$ ).

Cependant, dans le cas de l'oxygène et de l'azote, CARROL<sup>4)</sup> trouve des sections efficaces pour l'état gazeux qui s'accordent pratiquement avec celles de l'état liquide<sup>15)</sup>. Mais, ici aussi, les mesures à l'état liquide ont été faites à environ 80° K, tandis que pour les mesures à l'état gazeux la température était de 300° K.

Dans la présente publication, nous donnons les résultats de nos mesures dans l'hydrogène gazeux aux températures de 290°, 77° et 20° K.



## 2. Les hypothèses de la théorie et les conditions expérimentales.

La théorie de SACHS et TELLER n'est applicable qu'à des neutrons dont l'énergie, pour un composé hydrogéné gazeux donné, satisfait aux conditions  $E_{\text{rot}} < E_n < E_{\text{vib}}$  et  $E_n > (E_{\text{rot}} kT)^{1/2}$  où  $E_n$  est l'énergie des neutrons,  $T$  la température du gaz,  $E_{\text{vib}}$  la plus petite énergie de vibration de la molécule et  $E_{\text{rot}} = \frac{\hbar^2}{I_{\text{min}}}$  où  $I_{\text{min}}$  est le plus petit moment d'inertie de la molécule. Pour l'hydrogène il en résulte que  $E_n$  doit être compris entre 0,015 et 0,5 eV.

N'ayant pas à notre disposition une source de neutrons monochromatiques d'énergie aussi basse, nous avons dû envisager des mesures avec des neutrons ralentis dans la paraffine (à la température  $T_n$ ) et absorbés dans le cadmium (neutrons C). Comme l'on sait, la valeur moyenne du spectre ainsi obtenu est bien égale à  $\frac{3}{2} kT_n$ <sup>17) 18)</sup> ainsi qu'il faut s'y attendre si l'on admet que la distribution est maxwellienne.

Dans ces conditions, à la température ordinaire, la plupart des neutrons entrant en ligne de compte ont une énergie comprise entre 0,020 et 0,2 eV (limite d'absorption du cadmium). La condition de température la plus défavorable est donc  $(E_{\text{rot}} kT)^{1/2} \approx 0,02$ , ce qui donne  $T \simeq 300^\circ \text{K}$  (pour le gaz). Il est évident que la condition est alors satisfaite à fortiori pour des valeurs de  $T < 300^\circ \text{K}$ .

Nous en sommes ainsi réduits au domaine des températures inférieures à la température ordinaire.

Pour l'hydrogène la théorie n'impose pas d'autres limitations, mais il est évident qu'il faut que le courant des neutrons incidents soit monochromatique ou possède la distribution envisagée sous b). En fait, malgré de fortes présomptions<sup>17) 18)</sup> en faveur d'une distribution maxwellienne des neutrons C (dans la paraffine), il est possible que le courant ait une forme comprise entre

$$P_n^3 \exp(-P_n^2/2mkT_n) dP_n \quad \text{et} \quad P_n^2 \exp(-P_n^2/2mkT_n) dP_n.$$

La dernière expression correspondrait au cas où les neutrons sont freinés en un temps court relativement à la durée de vie moyenne des neutrons dans la substance où ils sont ralentis. D'après BETHE (§ 17), la vie moyenne des neutrons dans la paraffine est de  $10^{-4} \text{s}$ , tandis qu'il faut à peine  $10^{-6} \text{s}$  aux neutrons rapides pour que leur énergie tombe à 1 eV. On pourrait donc s'attendre, ainsi que le remarquent d'ailleurs SACHS et TELLER, à trouver des valeurs mesurées plus petites que les valeurs calculées. Cependant, il faut

tenir compte aussi de la façon dont les neutrons sont détectés. Nous employons la méthode usuelle de la chambre de bore, ce qui nécessite une correction due au fait que la section efficace varie alors comme  $1/v$ . On obtiendra donc la valeur expérimentale de  $\sigma$  en remplaçant, dans le calcul de la moyenne sur le spectre de neutrons, le courant neutronique émergeant de la paraffine,  $I(P_n)$ , par  $\frac{I(P_n)}{P_n}$ . On est conduit ainsi aux formules de SACHS et TELLER mais pour une distribution maxwellienne des neutrons dans la paraffine.

Pour d'autres gaz que l'hydrogène, les hypothèses théoriques imposent des restrictions supplémentaires aux conditions expérimentales, les plus favorables se rapportant au méthane.

### 3. Chambre thermique et production des températures.

Ainsi que nous l'avons déjà indiqué, nos mesures ont dû se faire à des températures inférieures à la température ordinaire et, comme il y a tout avantage à les distribuer sur un domaine de températures aussi étendu que possible, nous avons choisi l'intervalle 20—300° K (voir aussi n° 9).

Ne disposant pas d'hydrogène liquide, nous avons construit un liquéfacteur dont une description a déjà été publiée<sup>19)</sup> et à cette occasion nous avons établi une chambre de liquéfaction spéciale directement adaptée à des mesures de diffusion de neutrons aux différentes températures entre 20 et 300° K. Outre cette particularité le liquéfacteur devait avoir un rendement appréciable (env. 2,5 l/h) et peu de pertes, de façon à rendre possible le refroidissement de la masse relativement élevée de la chambre de diffusion (env. 1 kg).

Les températures étaient mesurées avec un thermomètre à résistance de platine et le contrôle de leur constance se faisait par la mesure de la pression dans la chambre de diffusion ainsi qu'au moyen de couples thermo-électriques.

La chambre thermique, formant en même temps chambre de liquéfaction pour l'hydrogène, était constituée par un vase métallique à double paroi de forme spéciale (Fig. 1). La construction métallique a dû être adoptée parce que nous ne disposions pas d'un verre dépourvu de bore, par exemple du verre à base de cérium<sup>15)</sup>, et ensuite du fait de la forme particulière et des grandes dimensions nécessaires. L'épaisseur des parois était de 0,5 mm et la perturbation ainsi apportée par cet obstacle peut être négligée.

L'espace compris entre les parois était évacué au moyen d'une pompe à diffusion de mercure. Le vide nécessaire, d'environ

$10^{-5}$  mm-Hg, était contrôlé au moyen d'un manomètre à ionisation magnétique<sup>20</sup>).

A l'intérieur du récipient se trouvaient les organes de liquéfaction et, au fond, la chambre de diffusion. La forme de la chambre thermique a été dictée par le souci d'interposer le moins de matière

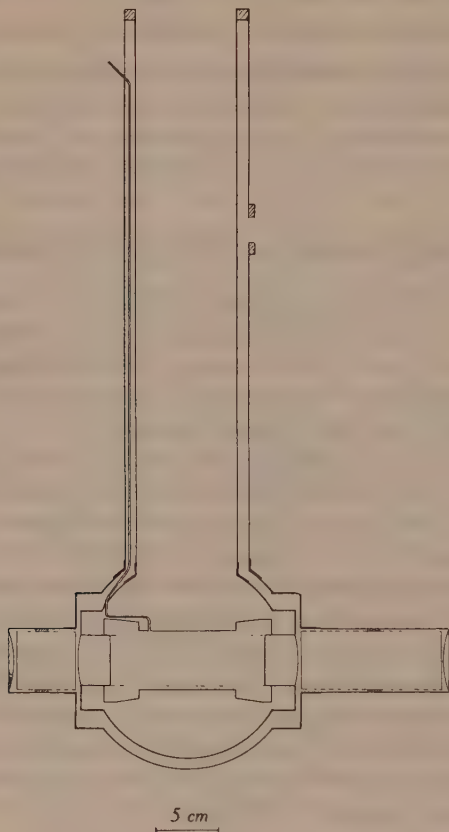


Fig. 1.

possible sur le trajet des neutrons, tout en satisfaisant aux conditions suivantes, que des essais préliminaires nous ont appris à considérer comme essentielles, à savoir: 1) les faces d'entrée et de sortie du faisceau de neutrons dans la chambre thermique doivent être isolées thermiquement de la paroi extérieure; celle-ci a en effet tendance à se recouvrir d'une mince couche de buée (dont l'épaisseur variable surtout serait à craindre), 2) tout au long du trajet à l'intérieur de la chambre thermique, le faisceau de neutrons doit

être délimité par des cylindres de cadmium coaxiaux, 3) les faces (d'entrée et de sortie) de la chambre de diffusion doivent être isolées de façon à ne pouvoir entrer en contact avec les liquides refroidisseurs ou avec leur vapeur (pour des raisons de précision évidentes), 4) la chambre de diffusion doit pouvoir être facilement enlevée pour faire place à une autre ou à de nouveaux éléments nécessaires à d'autres travaux avec la même chambre de liquéfaction.

D'autre part la nécessité de donner à la chambre thermique une construction mécaniquement résistante nous a conduits à la prévoir sans manteau protecteur d'azote liquide, l'isolement thermique direct entre l'hydrogène liquide et l'extérieur étant réalisé seulement par le vide de  $10^{-5}$  mm-Hg dans l'espace compris entre les parois de la chambre thermique. Ces conditions sont relativement critiques car au-dessus d'une pression d'environ  $10^{-4}$  mm-Hg on n'arrive plus à refroidir la chambre de diffusion à moins de  $35^{\circ}$  K environ.

La solution habituelle d'un manteau isolant d'azote liquide contenu dans un vase de DEWAR enveloppant la totalité de la chambre était à exclure d'avance pour des mesures avec neutrons.

Le choix des métaux employés dans la chambre a été dicté par les raisons suivantes: 1) il est clair que le fond de la chambre de liquéfaction n'a pas besoin d'être construit en alliage mauvais conducteur; il y a par conséquent tout avantage à choisir le cuivre en raison de la facilité avec laquelle il se laisse étamper, 2) sur le trajet des neutrons on a remplacé le cuivre par du laiton moins absorbant; l'aluminium, préférable encore sous ce rapport, a dû être rejeté, car il n'a pas été possible de trouver une soudure à l'aluminium satisfaisante pour le vide poussé, 3) les différences de coefficients de dilatation des métaux employés sont suffisamment petites pour qu'il ne se développe pas de tensions trop élevées aux lignes de jonction.

Les différentes parties métalliques sont soudées les unes aux autres soit à l'étain, soit à l'argent, le choix étant déterminé uniquement par les nécessités de montage ou démontage facile de la chambre de diffusion. Le comportement des deux types de soudure est parfait du point de vue de l'étanchéité, même aux basses températures.

Nous avons fait des mesures à la température ordinaire, à celle de l'azote liquide et à celle de l'hydrogène liquide. Pour obtenir la température de  $77^{\circ}$  K, on laissait s'évaporer une petite quantité d'azote liquide, conduite jusqu'au fond de la chambre thermique et renouvelée régulièrement suivant la consommation.



Cet azote pouvait être introduit au moyen d'un tube de neu-silber descendant dans la chambre de liquéfaction jusqu'au niveau de la valve d'expansion du liquéfacteur. La température de  $20^{\circ}\text{K}$  était obtenue en produisant d'abord une certaine quantité d'hydrogène liquide et en conservant ensuite ce volume aussi longtemps que possible au moyen d'un courant réduit d'hydrogène juste suffisant.

Dans de bonnes conditions de fonctionnement du liquéfacteur nous pouvions mesurer à  $20^{\circ}\text{K}$  pendant 6 heures environ, avec une consommation de 20 litres d'azote liquide et de 16.000 litres d'hydrogène gazeux sous une pression allant de 80 à 50 atm. Le temps de mise en marche de l'installation était en moyenne



Fig. 2.

de une heure et quart. L'intérieur de la chambre de liquéfaction (chambre de diffusion comprise) était refroidi préalablement à l'azote liquide et ensuite évacué ce qui abaissait la température à environ  $63^{\circ}\text{K}$ .

Toute température intermédiaire, comprise entre 20 et  $300^{\circ}\text{K}$ , peut d'ailleurs être obtenue et maintenue constante avec une précision de 1 à  $2^{\circ}\text{K}$ , en produisant un état thermique stationnaire de la façon déjà indiquée<sup>19</sup>). Une partie de nos mesures a été effectuée avec une chambre thermique plus simple (Fig. 2). Nous

avons pu l'employer pour la température de  $77^{\circ}$  K, mais des défauts d'étanchéité l'ont rendue inutilisable pour la liquéfaction de l'hydrogène. Dans ce type de chambre, l'intérieur était isolé à l'azote liquide sur la plus grande partie possible, mais la construction était beaucoup moins solide et la géométrie pour les neutrons moins satisfaisante que dans le second type.

#### 4. La chambre de diffusion.

La nécessité de placer la chambre de diffusion à l'intérieur de la chambre de liquéfaction sans trop augmenter les dimensions de celle-ci, et le souci de réaliser sensiblement la même transmission aux différentes températures ont limité le choix des dimensions de la chambre de diffusion.

La construction de la chambre de liquéfaction ne permettait pas d'envisager raisonnablement une longueur efficace supérieure à 12 cm. Dans ces conditions, pour avoir une transmission de l'ordre de 50% nous aurions dû prévoir à température ordinaire une pression de 40 atm. environ, ce qui aurait produit la liquéfaction

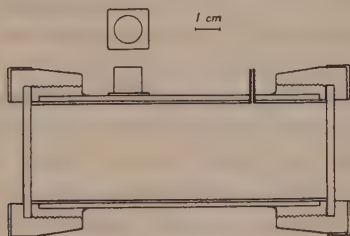


Fig. 3.

vers  $25^{\circ}$  K<sup>21</sup>). Si l'on veut descendre à l'état gazeux jusqu'à la température de  $20^{\circ}$  K il est nécessaire de ne pas dépasser 15 atm. à  $300^{\circ}$  K. Nous avons ainsi été conduits à prendre une longueur effective de 11,60 cm ce qui, pour une pression de 15 atm., donne une transmission de 75% environ (voir aussi n° 9).

Toutefois la chambre de diffusion a été dimensionnée pour pouvoir supporter une pression de 60 atm. (Fig. 3). Elle est constituée par un cylindre de cuivre creux, revêtu intérieurement d'une couche de cadmium de 1 mm d'épaisseur. Ce cylindre est fermé à ses deux extrémités par des plaques circulaires de duraluminium de 0,30 cm d'épaisseur. Ces plaques s'appuient sur des couronnes de laiton soudées au cuivre et sont serrées contre celles-ci par d'autres pièces, de laiton aussi, vissées sur les premières. On réalise ainsi un ensemble parfaitement étanche, tant pour le vide, que

pour des pressions allant jusqu'à 40 atm. au moins, et aussi bien à la température ordinaire qu'à celle de l'hydrogène liquide. Nous avons essayé d'autres combinaisons mais celle-ci seule nous a donné toute satisfaction.

Sur la paroi latérale du cylindre de cuivre est soudée une petite pièce cylindrique également de cuivre. Sur celle-ci s'enfonce un capuchon métallique sur lequel est enroulé le fil de platine qui constitue notre thermomètre à résistance.

Le diamètre de la chambre de diffusion (4,0 cm) a été choisi de façon à satisfaire aux conditions de collimation qui seront discutées plus loin (n° 6).

L'épaisseur assez grande des parois (2 mm) permet à la chambre de supporter, comme nous l'avons déjà dit, des pressions plus élevées que celle que nous avons choisie pour ce travail. Une telle épaisseur est cependant intéressante car elle assure à la chambre une grande capacité calorifique qui oppose une forte inertie à d'éventuelles variations de température. On peut en tout cas être sûr ainsi que la température donnée par le thermomètre à résistance de platine est bien égale à celle du gaz diffuseur. De leur côté les conditions de solidité requises par le mode de fermeture que nous avons adopté imposaient aussi des dimensions appréciables. Ainsi, malgré une économie de métal aussi poussée que possible, le poids total de la chambre de diffusion dépassait 1 kg ce qui, nous l'avons déjà vu, exige un bon rendement du liquéfacteur.

Le gaz à étudier peut être introduit dans la chambre de diffusion au moyen d'un tube de neusilber que l'on voit sur les figures 1 et 2. La pression du gaz dans la chambre était donnée par un manomètre de précision avec lequel on pouvait connaître la valeur initiale avec une erreur contrôlée de l'ordre de 0,1%.

## 5. Production et détection des neutrons.

a) Nous avons employé les neutrons produits par une source de 67 mg de Ra + Be à laquelle nous avons joint pour la plus grande partie des mesures une source de 300 mc de Rn + Be\*). Ces neutrons étaient ralentis dans un bloc de paraffine de la forme qu'il est convenu d'appeler « howitzer »<sup>22)</sup>. Les rayons gamma étaient affaiblis par un cylindre absorbant de plomb et la collimation du howitzer renforcée par des écrans de cadmium creux remplis de poudre comprimée d'acide borique (Fig. 8). Le nombre

\*) Bien que nous n'ayons pas essayé de faire des mesures absolues, nous n'avons remarqué aucune différence dans le rendement par mc des deux types de source.

de neutrons émis dans le sens utile était environ triple de celui émis en sens opposé.

b) La détection des neutrons se faisait par chambre d'ionisation, remplie de fluorure de bore ( $\text{BF}_3$ ) sous 3,2 atm. Avec une longueur effective de 10 cm l'efficacité de la chambre atteignait 25 %, valeur élevée rendue nécessaire par la géométrie de notre dispositif et l'intensité limitée de la source. D'autre part, afin d'avoir une collection rapide des ions malgré la forte pression et la tension relativement basse, nous avons prévu un système double d'électrodes. Il en est résulté un champ d'environ 1000 V/cm mais, par contre, la capacité de la chambre a fortement augmenté, rendant nécessaire une amplification de l'ordre de 150 000. Du reste le seul inconvénient de la grande capacité de la chambre est une certaine sensibilité aux rayons gamma et, par suite, un niveau perturbateur plus élevé. En fait, son fonctionnement s'est révélé très

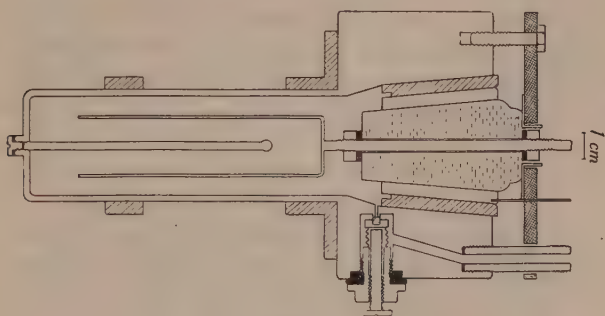


Fig. 4.

constant depuis plus d'un an et nous croyons intéressant d'en donner un schéma détaillé (fig. 4). La partie centrale supportant l'électrode collectrice est constituée simplement par un bouchon de verre rodé à l'émeri et percé le long de l'axe. Cette partie, et avec elle l'ensemble des pièces coniques, est maintenue par une plaque d'acier vissée au corps de la chambre, afin de bien en assurer l'étanchéité. Celle-ci a été contrôlée pendant deux mois sous une pression de 5 atm. L'ajustage étanche des pièces coniques les unes aux autres est obtenu simplement par le fini de leur rodage; aucune substance de liaison n'est interposée entre elles. Nous évitons ainsi la présence dans la chambre de substances susceptibles d'être attaquées par le trifluorure de bore ou de le rendre actif en se déshydratant. Les mêmes raisons nous ont fait choisir, pour isoler l'anneau de garde, un anneau d'ébonite dont la résistance à l'action du trifluorure de bore avait été éprouvée auparavant. Partout où cela



était nécessaire des joints de plomb ont été adoptés, ce métal étant, lui aussi, comme l'aluminium, réfractaire à l'action du trifluorure de bore bien sec.

Cependant toutes ces précautions seraient vaines si le gaz n'était pas parfaitement sec et si l'on ne prenait pas grand soin d'éviter toute contamination d'humidité lors du remplissage de la chambre.

c) Nous avons préparé nous-mêmes le trifluorure de bore, en principe d'après une méthode due à HELLRIEGEL<sup>23</sup>). Nous avons chauffé à 600° C, dans un gros tube à essai en verre Pyrex, un mélange d'anhydride borique (obtenu en déshydratant de l'acide borique dans un creuset de nickel) et de borofluorure de potassium  $\text{KBF}_4$ . La réaction est la suivante :



Il est nécessaire que le borofluorure de potassium soit aussi très sec. Nous l'avons préparé par une méthode connue<sup>24</sup>) que nous rappellerons brièvement. Sous une hotte, on neutralise à froid avec du carbonate de potassium un mélange d'acide fluorhydrique et

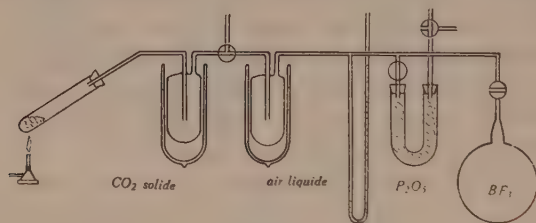
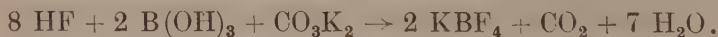


Fig. 5.

d'une solution d'acide borique. (Il est recommandé de le faire dans un récipient de platine.) On dissout alors dans un excès d'eau, on chauffe et on laisse évaporer l'eau qui entraîne l'acide fluorhydrique en excès. On laisse refroidir lentement et on filtre. On obtient ainsi une substance amorphe à consistance pâteuse. On la réchauffe à 270° C et on la laisse cristalliser alors très lentement en présence d'anhydride phosphorique sous une cloche évacuée. On obtient ainsi une poudre blanche très fine. La réaction se résume par l'équation



La figure 5 indique schématiquement l'appareil que nous avons employé pour la production du trifluorure de bore. La première

trappe est refroidie à la glace carbonique et la seconde à l'air liquide. Dans celle-ci le trifluorure de bore se solidifie.

Des précautions analogues à celles de la préparation s'imposent lors du remplissage de la chambre; nous avons employé le dispositif de la figure 6. Le petit ballon de verre, refroidi dans l'air liquide, permet de liquéfier le gaz et de le comprimer ensuite aisément dans la chambre jusqu'à la pression désirée.

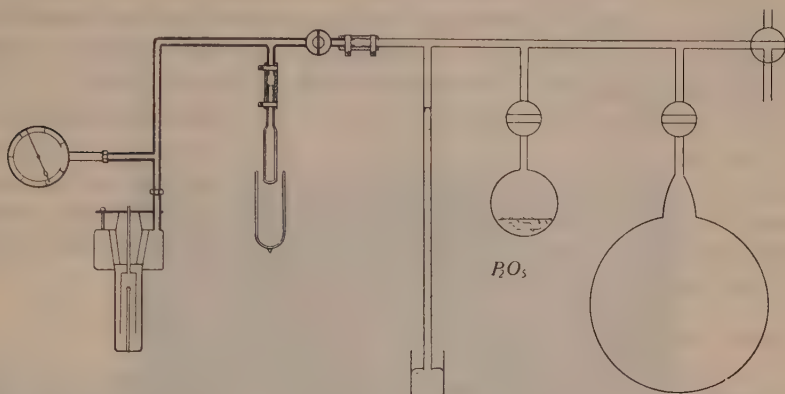


Fig. 6.

d) L'amplification et l'enregistrement des réactions déclenchées dans la chambre étaient assurés par un amplificateur linéaire déjà décrit<sup>25</sup>), précédé d'un étage préamplificateur (lampe 38 montée en pentode) avec une résistance de grille de  $4 \cdot 10^9$  ohms. La sortie de l'amplificateur attaquait, soit par l'intermédiaire d'un «scale of two», soit directement, la grille d'une thyatron coupant toutes les impulsions au-dessous d'un certain niveau et commandant un compteur mécanique du type des numérateurs téléphoniques. Toutes les tensions d'alimentation étaient stabilisées, le chauffage se faisait avec accus et les tensions d'anode et de grille-écran de la lampe préamplificatrice étaient fournies par une pile sèche.

La tension de la chambre était stabilisée et particulièrement bien filtrée. Tous les câbles étaient blindés et des découplages avaient été prévus aux endroits sensibles.

En l'absence de source le mouvement propre du compteur n'a jamais dépassé 4 coups par minute.

Dans la figure 8 nous donnons une photo de l'ensemble du dispositif de mesure.

## 6. Géométrie du dispositif.

Pour les mesures de diffusion une bonne géométrie, c'est-à-dire une bonne collimation et un faisceau parallèle, est essentielle. D'une part il est nécessaire de réduire au minimum des effets éventuels de diffusion multiple à l'intérieur de la chambre de diffusion de même que le plus grand angle de diffusion simple possible. D'autre part il faut éviter que la chambre de bore et la chambre de diffusion, puissent être atteintes par des neutrons étrangers au faisceau qu'on étudie, ou par des neutrons déjà diffusés qui rejoignent ce faisceau après de nouveaux chocs.

La collimation est déterminée par les diamètres de la chambre de bore et de la chambre de diffusion et les distances source—chambre de diffusion—chambre de bore, ainsi que par l'action du howitzer. Des écrans de cadmium et de bore évitent d'autre part que la chambre d'ionisation ne reçoive des neutrons extérieurs au faisceau qui a traversé la chambre de diffusion.

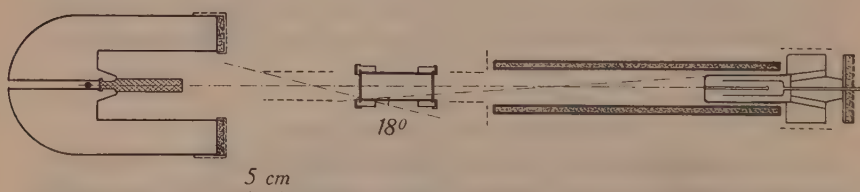


Fig. 7.

Dans la figure 7 nous donnons un schéma de la disposition relative du howitzer, du diffuseur et de la chambre d'ionisation. Les écrans de cadmium sont constitués par des feuilles de 1 mm d'épaisseur<sup>26)</sup> et ceux de bore par de la poudre d'acide borique comprimée, sous une épaisseur de 10 mm environ. Le diamètre de la chambre de bore est de 4,0 cm et celui de la chambre de diffusion de 3,8 cm. Le plus grand angle possible de diffusion simple est de 18 degrés, mais cette valeur maximum n'intervient qu'avec une très faible probabilité, en particulier grâce aux propriétés collimatrices du howitzer.

Quant à la diffusion multiple dans la chambre de diffusion, il est légitime de la négliger à condition que la longueur de la chambre soit plus petite que le libre parcours moyen des neutrons dans le gaz étudié.

Un autre aspect important de la géométrie du dispositif est l'alignement sur un même axe de ses différentes parties, ainsi que

la reproductibilité des positions de celles que l'on doit déplacer. A cet effet nous avons pris des précautions spéciales et pensons pouvoir assurer que les différentes pièces ont toujours été centrées les unes sur les autres à moins de 1 mm.

### 7. Organisation des mesures.

Les mesures de sections de diffusion totale consistent dans l'enregistrement du courant de neutrons alternativement, avec et sans gaz diffuseur. Cela se fait, en général, au moyen de deux chambres de diffusion exactement pareilles, l'une remplie de gaz, l'autre vide (témoin), que l'on replace successivement dans la même

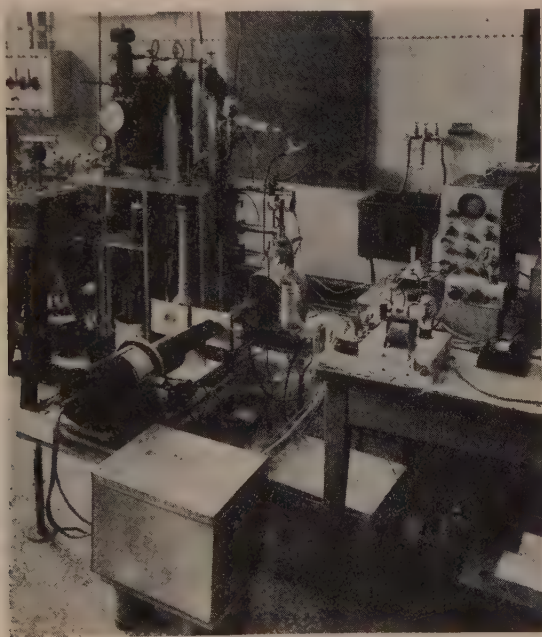


Fig. 8.

position sur le trajet des neutrons. Il est bien évident qu'avec notre dispositif, conçu pour des mesures aux basses températures, une telle méthode était inapplicable. Il nous était impossible en effet de déplacer la chambre de diffusion et nous ne pouvions songer à réaliser un témoin parfaitement équivalent à cette dernière à cause précisément de la variété des pièces qui l'entouraient dans la chambre de liquéfaction.



Dans ces conditions nous avons dû laisser la chambre de diffusion fixe et déplacer l'ensemble constitué, d'une part par le howitzer et d'autre part par la chambre d'ionisation et l'étage préamplificateur. Dans ce but nous avons monté chacune de ces deux parties sur un charriot (fig. 8). Les déplacements se faisaient à la main et des points d'arrêt assuraient, après chaque déplacement, le retour exact à la position initiale.

Dans l'une des positions les neutrons traversaient la chambre de diffusion et dans l'autre, le témoin construit de façon que la géométrie et la collimation soient les mêmes qu'avec la chambre.

Toutes nos mesures étaient organisées en cycles de 20 minutes de la façon suivante: 5 minutes avec diffuseur, 5 minutes avec témoin, 5 minutes avec diffuseur et avec cadmium, puis 5 minutes avec témoin et cadmium, et ainsi de suite.

Nous avons fait également quelques mesures dans d'autres conditions, en apparence plus simples, mais en réalité peu appropriées à la technique des basses températures. Après 20 minutes de mesures avec gaz diffuseur (alternativement toutes les 5 minutes avec et sans cadmium), nous faisons le vide dans la chambre de diffusion mesurons à vide pendant 20 minutes et recommençons le cycle avec la chambre pleine. L'avantage de cette méthode c'est qu'on évite l'emploi d'un témoin et l'erreur statistique supplémentaire qu'il introduit. Par contre avec la première méthode on réalise une grande économie de froid et on n'a pas à craindre d'erreur sur la pression du gaz lors des remplissages à froid de la chambre de diffusion.

La première méthode nous obligeait à déterminer avant et après chaque série de mesures le rapport entre le nombre de neutrons lents que le témoin et la chambre de diffusion vide laissaient passer. Ce rapport était un peu plus grand que l'unité et les différentes valeurs que nous avons obtenues au cours de nos mesures présentaient toutes entre elles des écarts plus petits que les erreurs statistiques.

### 8. Calcul et erreurs.

Le rapport témoin—diffuseur est donné par quatre nombres

$a, b, c, d$ :  $R = \frac{a-b}{c-d}$ , avec:

$a$	=	nombre de neutrons enregistrés avec témoin	sans Cd
$b$	=	„ „ „ „ „ „	avec „
$c$	=	„ „ „ „ „ „	chambre vide sans „
$d$	=	„ „ „ „ „ „	„ „ avec „

L'erreur  $\Delta R$  sur  $R$  est ainsi  $\Delta R = \frac{1}{c-d} \sqrt{a+b+R^2(c+d)}$ , en prenant pour erreurs sur les nombres enregistrés leur racine carrée.

La section efficace est ensuite calculée par la combinaison de ce nombre avec quatre nouveaux nombres  $A, B, C, D$ , dont la définition est la même que pour  $a, b, c, d$ , respectivement, à la seule condition d'y remplacer « chambre vide » par « chambre et gaz ». La transmission est donc  $T = \frac{(C-D)R}{A-B}$  et en acceptant la loi de transmission exponentielle on a  $\sigma = \frac{1}{nd} \log \frac{1}{T}$  où  $n$  est le nombre d'atomes, par  $\text{cm}^3$ , du gaz diffuseur et  $d$  la longueur, en  $\text{cm}$ , de la chambre.

L'erreur sur  $\sigma$  est ensuite calculée par la formule

$$\Delta \sigma = \frac{1}{nd} \sqrt{\frac{C+D}{(C+D)^2} + \frac{A+B}{(A-B)^2} + \left(\frac{\Delta R}{R}\right)^2}.$$

Comme nous l'avons déjà remarqué, les conditions spéciales aux basses températures nous ont forcés à choisir une transmission de 75% environ. Ceci a entraîné un allongement de nos mesures. En effet, on peut se demander quelles sont les conditions optima de transmission du point de vue de l'erreur et, par conséquent, du temps de mesures. On est amené à chercher le minimum de la fonction  $\frac{\Delta \sigma}{\sigma}$  lorsque  $T$  varie, mais il est impossible de résoudre rigoureusement ce problème. Dans notre cas des approximations raisonnables indiquent une transmission de 30% environ. Celle-ci serait donc la valeur qui donnerait l'erreur minimum pour un temps de mesure déterminé.

On voit aussi que la nécessité de tenir compte de l'erreur sur les mesures avec témoin a encore augmenté notre erreur statistique totale (voir n° 9).

### 9. Formules de Sachs et Teller.

L'article déjà cité de SACHS et TELLER contient malheureusement plusieurs erreurs typographiques qui nous ont forcé à refaire leur calculs. Nous croyons donc utile de donner ici les formules auxquelles conduit leur raisonnement, pour le cas qui nous intéresse (distribution de MAXWELL). On a, avec leur notation

$$\frac{\bar{\sigma}}{\sigma_H} = 4 (\mu_1 \mu_2 \mu_3 \mu)^{\frac{1}{2}} (T_0' + T_1' + \dots)$$

où

$$T_0' = \frac{2\lambda^{3/2}}{\pi(\lambda-a)} \left| \frac{\sqrt{a}}{\lambda^2} (\lambda-2a) + (\lambda-a)^{-\frac{1}{2}} \operatorname{arccotg} \left( \frac{\lambda}{a} - 1 \right)^{-\frac{1}{2}} \right|$$

et

$$T_1' = -\frac{1}{90\mu^2} [a_1(J_1 + J_3) + a_2 J_2]$$

avec

$$a_1 = \frac{1}{2} \sum_{i>j} (\mu_i - \mu_j)^2, \quad a_2 = 5 \sum_i n_i \mu_i^2$$

$$J_1 + J_3 = \frac{2\lambda^{3/2}}{\pi(\lambda-a)^3} \left\{ (\lambda^2 - 8\lambda a - 8a^2 - 15) (\lambda-a)^{-\frac{1}{2}} \operatorname{arccotg} \left( \frac{\lambda}{a} - 1 \right)^{-\frac{1}{2}} + \frac{1}{\lambda^2 \sqrt{a}} (a\lambda^3 + 14a^2\lambda^2 + 8\lambda^2 + 9a\lambda - 2a^2) \right\}$$

$$J_2 = \frac{2\lambda^{3/2}}{\pi(\lambda-a)^3} \left\{ 3(\lambda + 4a) (\lambda-a)^{-\frac{1}{2}} \operatorname{arccotg} \left( \frac{\lambda}{a} - 1 \right)^{-\frac{1}{2}} - \frac{\sqrt{a}}{\lambda} (13\lambda + 2a) \right\}.$$

Rappelons que dans ces formules le sens des symboles est le suivant :

$$\lambda = \frac{T_n}{T}, \quad a = \frac{1}{\mu} - 1, \quad \mu = \frac{1}{3} \sum_i \mu_i \quad \text{et} \quad \mu_i = \frac{1}{n_i + 1},$$

les  $n_i$  étant les composantes du tenseur  $n = m M^{-1}$  par rapport aux axes principaux d'inertie de la molécule,  $m$  la masse du neutron et  $M$  le tenseur-masse du point matériel fictif, que les auteurs associent à la molécule.

Il est regrettable que la valeur de  $\bar{\sigma}/\sigma_H$  soit encore très sensible au terme  $T_1'$  et que celui-ci soit justement proportionnel à la différence de deux termes presque égaux. La plus grande erreur à craindre nous semble provenir de ce terme  $T_1'$ . Or celui-ci décroît avec  $T$  (température du gaz) beaucoup plus rapidement que  $T_0'$ . Il est donc fort probable que l'accord entre la théorie et l'expérience soit meilleur pour les valeurs relatives aux basses températures.

D'autre part SACHS et TELLER, comme contrôle grossier de leur théorie, donnent la valeur de  $\sigma_H$  calculée d'après leur valeur théorique et les mesures de COHEN, GOLDSMITH et SCHWINGER<sup>8</sup>). Or ceux-ci ont fait leurs mesures à la température ordinaire avec des neutrons probablement de même température. Dans ces conditions on doit poser  $\lambda=1$ , dans les formules de SACHS et TELLER, et ce faisant on trouve  $\bar{\sigma}/\sigma_H = 1,87$  et non pas 1,69 comme les auteurs l'indiquent. Nous n'avons pas pu comprendre l'origine de

cet écart, si ce n'est précisément dans la facilité avec laquelle une erreur peut s'introduire dans le calcul de  $T_1'$ .

On peut encore faire une objection à la façon dont nous comparons les valeurs théoriques et les valeurs expérimentales. En effet, la théorie donne une valeur moyenne de  $\sigma$ , tandis que nous ne mesurons pas un  $\sigma$  moyen mais plutôt une transmission moyenne. Cependant il est clair que cette approximation (qui a d'ailleurs toujours été admise) est d'autant plus légitime que la transmission est plus grande et nous avons précisément, pour les raisons déjà données, une transmission de 75% environ.

### 10. Résultats et discussion.

Nous avons déjà indiqué comment nous avons obtenu nos résultats expérimentaux ainsi que leurs erreurs. Nous avons calculé les grandeurs données par les formules de SACHS et TELLER (n° 9) en y remplaçant partout les symboles par leur valeur numérique prise avec 5 chiffres significatifs.

Pour les raisons exposées précédemment, nous ne pensons pas devoir tenir compte de la valeur théorique de  $\bar{\sigma}/\sigma_H$  à 290° K pour le calcul de  $\sigma_H$  moyen. Nous indiquons celui qui résulte de nos mesures et des calculs à 77° K et à 20° K. Nous avons pris pour valeur la plus probable leur moyenne pondérée, en prenant pour poids les inverses des carrés des erreurs quadratiques moyennes des deux déterminations. Nous avons ainsi trouvé

$$\sigma_H = (19,6 \pm 1,4) \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

Les nombres obtenus sont résumés dans le tableau suivant

$T$	$\lambda$	$\bar{\sigma}/\sigma_H$ calc.	$\sigma$ par proton mesuré	$\sigma_H$ déduit
77° K	3,77	1,42	$27,2 \pm 1,6$	$19,2 \pm 1,1$
20° K	14,5	1,27	$26,2 \pm 2,9$	$20,3 \pm 2,3$

D'autre part nos mesures à 290° K ont servi à estimer le fonctionnement correct de notre dispositif de mesures. Notre valeur est  $31,6 \pm 0,6$ , en excellent accord avec la valeur  $31,8 \pm 0,5$  trouvée par CARROL<sup>4</sup>).

La valeur à 20° K, qui n'a malheureusement pas pu être déterminée avec une plus grande précision, est cependant suffisamment distincte de la valeur à 290° K pour que l'existence d'un effet appréciable de la température ne fasse pas de doute.



Par ailleurs, notre méthode de mesure de  $\sigma_H$  est fondée sur des considérations de nature purement moléculaire, qui peuvent être considérées comme définitivement acquises. Tandis que les mesures précédentes de  $\sigma_H$ , même les plus précises s'appuyaient toutes sur des hypothèses nucléaires moins indiscutables, en particulier sur la supposition que les interactions nucléaires sont indépendantes de la vitesse des neutrons au-dessous d'une certaine limite. On peut donc dire que nos mesures sont complètement indépendantes de ces dernières. Or, tandis que COHEN, GOLDSMITH et SCHWINGER trouvent  $\sigma_H = 20 \pm 2$ , que HANSTEIN mesure  $\sigma_H = 21 \pm 1$ , nous sommes conduits à la valeur  $\sigma_H = 19,6 \pm 1,4$ , en très bon accord avec les précédentes. Ce résultat constitue donc une justification à posteriori de la légitimité de l'hypothèse nucléaire que nous venons de rappeler.

## 11. Conclusions.

Il nous semble légitime de tirer de notre travail les conclusions suivantes:

1) Il existe un appréciable effet de température sur la section efficace de diffusion des neutrons lents par des molécules hydrogénées gazeuses.

A 300° K, celle-ci a la valeur  $31,6 \pm 0,6$  pour l'hydrogène gazeux, en bon accord avec les valeurs déjà connues.

2) Dans les limites de son domaine d'application, la théorie de SACHS et TELLER donne une description quantitative de cet effet, du moins aux basses températures.

3) La section efficace de diffusion des neutrons de faible énergie par le proton libre initialement au repos est comprise dans l'intervalle  $\sigma_H = 19,6 \pm 1,4$ , en bon accord avec d'autres mesures.

4) Pour l'hydrogène à 20° K, l'influence de l'état d'aggrégation sur la valeur de la section efficace de diffusion des neutrons C de 300° K est inférieure aux erreurs d'observation actuelles. En effet, BRICKWEDDE et collaborateurs<sup>15)</sup> trouvent pour l'hydrogène liquide  $\sigma = 24,0$ , tandis que nous trouvons pour l'hydrogène gazeux, à la même température,  $\sigma = 26,2 \pm 2,9$ .

5) Toutefois certaines conclusions sur l'absence (en général) d'un effet de l'état d'aggrégation (voir, par ex.)<sup>4)</sup> semblent pouvoir être mises en doute, les valeurs comparées se rapportant à des températures nettement différentes. En fait la section efficace de l'état liquide est vraisemblablement différente de celle de l'état gazeux par suite du champ intermoléculaire.

Pour l'hydrogène l'absence d'un effet très prononcé pourrait s'expliquer<sup>27)</sup> de la façon suivante: les mesures de l'effet Raman dans l'hydrogène liquide<sup>28)</sup> ainsi que celles des chaleurs d'évaporation et de fusion de l'hydrogène normal et du parahydrogène<sup>29)</sup> montrent que les molécules d'hydrogène à l'état liquide exécutent encore des rotations libres, ce qui semble bien indiquer une faible interaction moléculaire.

Dans cet ordre d'idées, il serait intéressant d'étudier l'oxygène ou l'azote. En effet, il semble que pour ces éléments et, en général, pour toutes les molécules non polaires, l'effet Raman<sup>30)</sup> est insensible à l'état d'aggrégation. D'autre part d'après PAULING<sup>31)</sup>, à l'état solide, ce n'est qu'au-dessus des températures de transition (44,8 et 35,4, respectivement) que la plupart des molécules d'oxygène et d'azote sont en rotation libre. Un effet décelable sur la diffusion des neutrons est donc à prévoir à très basse température.

Il en serait de même pour le méthane au-dessus de la température de transition malgré la très basse valeur de celle-ci (20,4° K).

6) Enfin, les considérations qui précèdent, en liaison éventuelle avec la méthode théorique de SACHS et TELLER, semblent susceptibles d'ouvrir aux neutrons une nouvelle voie d'application: celle de l'étude de certains effets des liaisons moléculaires hydrogénées non décelables par les rayons X.

Nous tenons en terminant à remercier très vivement Monsieur le Professeur P. SCHERRER de ses encouragements et des moyens matériels qu'il a bien voulu mettre à notre disposition.

Zurich, Institut de Physique de l'E. P. F.

### Bibliographie.

- 1) FERMI, E., Ric. Scient. **7**, 13 (1936).
- 2) BETHE, H. A., Rev. Mod. Phys. **9**, 124 (1937).
- 3) ARLEY, N., Kgl. Dansk. Vid. Selsk **16**, 1 (1938).
- 4) CARROL, H., Phys. Rev. **60**, 702 (1941).
- 5) SACHS, R. G., et TELLER, E., Phys. Rev. **60**, 18 (1941).
- 6) SCHWINGER, J., Phys. Rev. **58**, 1004 (1940).
- 7) AMALDI, E., et FERMI, E., Phys. Rev. **50**, 899 (1936).
- 8) CARROL, H., et DUNNING, J. R., Phys. Rev. **54**, 541 (1938).
- 9) SIMONS, L., Phys. Rev. **55**, 792 (1939).
- 10) COHEN, V. W., GOLDSMITH, H. H., et SCHWINGER, J., Phys. Rev. **55**, 106 (1939).
- 11) HAMMERMESH, M., et SCHWINGER, J., Phys. Rev. **55**, 679 (1939).
- 12) AMALDI, E., BOCCIARELLI, D., et TRABACCHI, G. C., Ric. Scient. **11**, 121 (1940).
- 13) COHEN, V. W., GOLDSMITH, H. H., et HAMMERMESH, M., Phys. Rev. **57**, 352 (1940).

- <sup>14)</sup> HANSTEIN, H. B., Phys. Rev. **60**, 702 (1941).
  - <sup>15)</sup> BRICKWEDDE, F. G., DUNNING, J. R., HOGE, A. J., et MANLEY, J. H., Phys. Rev. **54**, 266 (1938).
  - <sup>16)</sup> ALVAREZ, L. W., et PITZER, K. S., Phys. Rev. **58**, 1003 (1940).
  - <sup>17)</sup> DUNNING, J. R., PEGRAM, G. B., FINK, G. A., MITCHELL, D. P., et SEGRÈ, E., Phys. Rev. **48**, 704 (1935).
  - <sup>18)</sup> FINK, G. A., DUNNING, J. R., PEGRAM, G. B., et MITCHELL, D. P., Phys. Rev. **49**, 103 (1936).
  - <sup>19)</sup> GIBERT, A., et ROSSEL, J., Helv. Phys. Acta **18**, 343 (1945).
  - <sup>20)</sup> PENNING, F. M., Physica **4**, 71 (1937).
  - <sup>21)</sup> KEESOM, W. H., et HOUTHOF, D. J., Comm., Leiden, Supp. **65d**; Rapp. Comm., 5e Cong. Int. Froid (1928).
  - <sup>22)</sup> FINK, G. A., Phys. Rev. **50**, 738 (1936). MANLEY, J. H., HAWORT, L. J., et LUEBKE, E. A., Phys. Rev. **61**, 152 (1942).
  - <sup>23)</sup> HELLRIEGEL, Ber. Dtsch. Chem. Ges. **70**, 689 (1937).
  - <sup>24)</sup> VORLÄNDER, HOLLATZ et FISCHER, Ber. Dtsch. Chem. Ges. **65**, 535 (1932).
  - <sup>25)</sup> HUBER, P., Helv. Phys. Acta **14**, 164 (1941).
  - <sup>26)</sup> DUNNING, J. R., PEGRAM, G. B., FINK, G. A., et MITCHELL, D. P., Phys. Rev. **48**, 265 (1935).
  - <sup>27)</sup> SCHWINGER, J., et TELLER, E., Phys. Rev. **52**, 286 (1937).
  - <sup>28)</sup> MCLENNAND, J. C., et MCLEOD, J. H., Nature **123**, 160 (1929).
  - <sup>29)</sup> FARKAS, A., Orthohydrogen, Parahydrogen and Heavy Hydrogen, p. 43, Cambridge (1935).
  - <sup>30)</sup> KOHLRAUSCH, W., Smekal-Raman-Effekt (et Ergänzungsband).
  - <sup>31)</sup> PAULING, L., Phys. Rev. **36**, 430 (1930).
-

## Die 93 keV- $\gamma$ -Linie des $UX_1$

von H. Bradt und P. Scherrer.

(20. VI. 1946.)

### I. Einleitung.

Im  $\beta$ -Spektrum des  $UX_1$  sind von MEITNER<sup>1)2)</sup> Linien beobachtet worden, welche als  $L_I$ -,  $M_I$ - und  $N_I$ -Konversionslinien einer dem Übergang  $UX_1$ — $UX_2$  zugeordneten  $\gamma$ -Strahlung der Wellenlänge  $\lambda = 0,134$  Å, d. h. der Quantenenergie  $E_q = 92,5$  keV anzusehen sind. Die praktisch genaue Übereinstimmung der Wellenlänge dieser  $\gamma$ -Strahlung mit der Wellenlänge der  $K_{\alpha_1}$ -Röntgenstrahlung des  $UX_2$  (Protactiniumisotop)  $\lambda_{K_{\alpha_1}} = 0,1346$  Å legte die Vermutung nahe, dass die beobachteten  $\beta$ -Linien in der Tat nichts anderes als Konversionslinien der durch den  $\beta$ -Zerfall des  $UX_1$  angeregten  $K_{\alpha_1}$ -Strahlung des Folgeprodukts  $UX_2$  sind, d. h. dass die Elektronen dieser Linien bei der Auffüllung der ionisierten K-Schale durch einen strahlungslosen Übergang ausgesandt werden (MEITNER<sup>2)</sup>, RUTHERFORD, CHADWICK und ELLIS<sup>3)</sup>). Nach MEITNER<sup>2)</sup> wäre auch noch eine sehr schwache  $L_I$ -Konversionslinie einer  $\gamma$ -Strahlung der Wellenlänge  $\lambda = 0,128$  Å vorhanden, welcher Wert praktisch gleich der Wellenlänge der Protactinium- $K_{\alpha_1}$ -Strahlung  $\lambda_{K_{\alpha_1}} = 0,1288$  Å ist.

Die Deutung der  $UX_1$ -Elektronenlinien als Konversionslinien der  $K_{\alpha_1}$ -Strahlung des Folgeprodukts scheint aber keinesfalls ohne weiteres annehmbar. Erstens ist nicht verständlich, was in diesem Falle die Ursache der verhältnismässig häufigen Ionisation der K-Schale beim Zerfall des  $UX_1$  wäre; die absolute Intensität der  $\beta$ -Linien ist nach MEITNER<sup>4)</sup> von der Grössenordnung einiger Prozent, so dass die Wahrscheinlichkeit der Ionisation der K-Schale beim  $\beta$ -Zerfall des  $UX_1$  sehr gross sein müsste. Zweitens wäre in diesem Falle sehr merkwürdig, dass die Konversionslinien der  $K_{\alpha_1}$ -Strahlung intensiver wären als diejenigen der  $K_{\alpha_1}$ -Strahlung.

Ein zweites Beispiel, wo ebenfalls trotz Fehlens einer intensiven Kern- $\gamma$ -Strahlung Ionisierung der K-Schale beim radioaktiven Zerfall mit fast hundertprozentiger Wahrscheinlichkeit aufzutreten schien, war das *Radiothorium*, welches ebenso wie das  $UX_1$  ein Thoriumisotop ist. MEITNER<sup>4)</sup> beobachtete im  $\beta$ -Spektrum des  $RdTh$  vier Linien, die als  $L_I$ - und  $M_I$ -Konversions-



linien zweier  $\gamma$ -Linien von 88,5 keV ( $\lambda = 0,140$  Å) und 85,5 keV ( $\lambda = 0,145$  Å) anzusehen sind. Diese MEITNERSchen Energiewerte stimmen praktisch genau überein mit den Energien der  $K_{\alpha_1}$ - und  $K_{\alpha_2}$ -Röntgenstrahlung von 88,47 keV resp. 85,48 keV (FRILLEY<sup>5</sup>) des durch den  $\alpha$ -Zerfall des Radiothorium entstehenden Radium-Isotops ThX. Sind die  $\gamma$ -Linien, deren Konversionslinien von MEITNER beobachtet wurden, mit den  $K_{\alpha}$ -Röntgenlinien des ThX zu identifizieren, so müsste praktisch jeder  $\alpha$ -Zerfall des RdTh zu einer Ionisierung der K-Schale des Folgeprodukts führen, was mit allen akzeptierten Vorstellungen kaum in Einklang zu bringen wäre.

In der Tat ist beim RdTh, wie Präzisionsmessungen der Energien der  $\beta$ -Linien von SURUGUE und TSIEN-SAN-TSIANG<sup>6</sup>) zeigen, die Übereinstimmung der Energien der  $\gamma$ -Linien des RdTh mit den Energien der  $K_{\alpha}$ -Linien des Folgeprodukts nur zufällig und verschwindet bei genauerer Messung. Die von SURUGUE und TSIEN-SAN-TSIANG gemessenen genauen Werte für die Energien der beiden  $\gamma$ -Linien sind 86,8 keV und 83,3 keV, also eindeutig kleiner als die Quantenenergien der Ra- $K_{\alpha}$ -Linien. Die von MEITNER beobachteten  $\beta$ -Linien des RdTh sind also die normalen Konversionslinien einer Kern- $\gamma$ -Strahlung. Zu diesem Ergebnis führten auch Messungen der Feinstruktur der RdTh- $\alpha$ -Strahlen von ROSENBLUM und CHAMIE<sup>7</sup>). Diese Autoren bestimmten durch magnetische Ablenkung die Geschwindigkeit der RdTh- $\alpha$ -Strahlen und beobachteten zwei Gruppen der Energien  $E_0 = 5,517$  MeV und  $E_1 = 5,431$  MeV. Die Energiedifferenz dieser Gruppen von 86 keV ist also gleich der Energie, die sich aus den Energien der  $\beta$ -Linien für die  $\gamma$ -Strahlung ergibt, wie dies der Fall sein muss, wenn es sich um eine Kern- $\gamma$ -Strahlung handelt. Wären die  $\beta$ -Linien Konversionslinien der  $K_{\alpha}$ -Strahlung des ThX, so hätte die Energiedifferenz der  $\alpha$ -Gruppen gleich der Ionisierungsenergie der K-Schale des ThX-Atoms 103,2 keV sein müssen.

Um den analogen Fall des UX<sub>1</sub> näher zu untersuchen, haben wir das  $\beta$ -Spektrum des UX<sub>1</sub> mit dem magnetischen Spektrographen ausgemessen und die absolute Intensität der Konversionslinien bestimmt. Durch Intensitätsmessungen der verschiedenen Komponenten der UX- $\gamma$ -Strahlung konnte auch die Konversionswahrscheinlichkeit der 93 keV- $\gamma$ -Strahlung des UX<sub>1</sub> bestimmt werden.

Der Wert der Quantenenergie, den wir aus unserem H<sub>g</sub>-Wert der L<sub>T</sub>-Konversionslinie berechnen

$$E_q = (93,0 \pm 0,5) \text{ keV}$$

ist nur sehr wenig grösser als der möglicherweise genauere Wert von MEITNER,  $E_q = 92,5$  keV, und der Unterschied gegenüber der Quantenenergie der Pa- $K_{\alpha_2}$ -Strahlung liegt durchaus innerhalb der Messgenauigkeit. Auf Grund der im Folgenden dargestellten Ergebnisse ist jedoch als wahrscheinlich anzunehmen, dass beim  $UX_1$ , wie beim RdTh, die beobachteten  $\beta$ -Linien die Konversionslinien einer normalen Kern- $\gamma$ -Strahlung sind, deren Quantenenergie nur zufällig der Quantenenergie der K-Strahlung des Folgeprodukts sehr nahe benachbart ist.

## II. Das $\beta$ -Spektrum des $UX_1$ .

Das  $\beta$ -Spektrum des  $UX_1$  wurde mit dem magnetischen Halbkreispektrographen ausgemessen. Das  $UX$ , welches zuerst mit Cerium als Träger vom Uran getrennt worden war, wurde mit 0,3 mg Thorium als Trägersubstanz vom Cer abgetrennt (Fällung als Peroxyd mit  $H_2O_2$  aus neutraler Lösung) und auf einem schmalen Streifen Filterpapier niedergeschlagen, der die Quelle darstellte. Zur Registrierung der Elektronen diente ein mit einer  $0,8 \mu$  Zaponlackfolie abgeschlossenes Zählrohr. Fig. 1 zeigt den weichen Teil des Impulsspektrums der  $UX$ -Elektronen. Unterhalb 30 keV, wo die Korrektur bezüglich Absorption in der Zählrohr-Abschlussfolie (LENARD, Handbuch der Physik XXII<sub>2</sub>, S. 41) gross wird, ist der Verlauf des gemessenen Spektrums nicht mehr eingezeichnet. Um die Intensität der starken  $L$ -,  $M$ - und  $N$ -Konversionslinien der 93 keV-Strahlung zu ermitteln, sollte die zum  $UX_1$ -Spektrum gehörige Fläche des Diagramms bestimmt werden können, was infolge der Unsicherheit der Extrapolation der Energieverteilung unterhalb 30 keV nicht genau möglich ist. Diese Unsicherheit ist aber nicht von Belang, da die zum energiereichen  $UX_2$ -Spektrum gehörige Fläche sehr genau bestimmt werden kann. Es wurde verifiziert, dass in der Tat innerhalb der durch die Unsicherheit der Extrapolation des weichen  $UX_1$ -Spektrums gegen den Nullpunkt bedingten Fehlergrenze beide Flächen gleich gross sind, wie es sein muss, da  $UX_2$  das Folgeprodukt des  $UX_1$  ist. Das  $UX_2$ -Spektrum im Energiebereich unterhalb 200 keV, wo es vom  $UX_1$ -Spektrum überdeckt ist, wurde nach der FERMI'schen Formel auf Null extrapoliert.

Als obere Grenze des  $UX_1$ - $\beta$ -Spektrums ergibt sich aus einem FERMI-Diagramm dieses Spektrums der Wert

$$\underline{E_{\max}^{UX_1} = (0,205 \pm 0,010) \text{ MeV.}}$$

Von MARSHALL<sup>8)</sup> ist auf Grund von Wilsonkammermessungen für die obere Grenze des  $UX_1$ - $\beta$ -Spektrums der Wert  $(0,265 \pm 0,03)$  MeV bestimmt worden.

Für die Intensitäten der  $L_I$ - und der nicht mehr ganz aufgelösten  $M$ - und  $N$ -Konversionslinien ergeben sich nach Fig. 1,

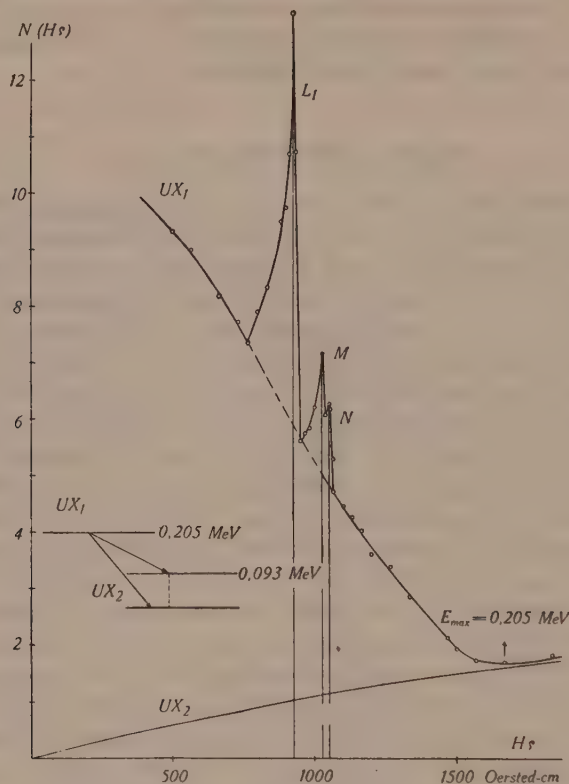


Fig. 1.

$UX_1$ - $\beta$ -Spektrum

mit den Konversionslinien der 93 keV- $\gamma$ -Strahlung

wenn die zum kontinuierlichen  $UX_1$ -Spektrum gehörige Fläche des Diagramms durch die zum kontinuierlichen  $UX_2$ -Spektrum gehörige Fläche ersetzt wird, die Werte

$$N_L = 0,051 \text{ } L_I\text{-Elektronen/Zerfall}$$

$$\underline{N_{(M+N)} = 0,010 \text{ } (M+N)\text{-Elektronen/Zerfall.}}$$

### III. Intensität der vom UX emittierten Pa-L-Röntgenstrahlung.

Die Konversion der 93 keV- $\gamma$ -Linie des  $\text{UX}_1$  in der L-Schale muss zur Emission der Pa-L-Röntgenstrahlung Anlass geben. In der Tat ist diese L-Strahlung nach der 93 keV- $\gamma$ -Strahlung die intensivste Quantenstrahlung des UX.

Fig. 2 zeigt die logarithmischen Absorptionskurven der Pa-L-Strahlung des UX in Selen und Platin. UX-Präparat und Zählrohr befinden sich an den entgegengesetzten Enden der Polschuhe

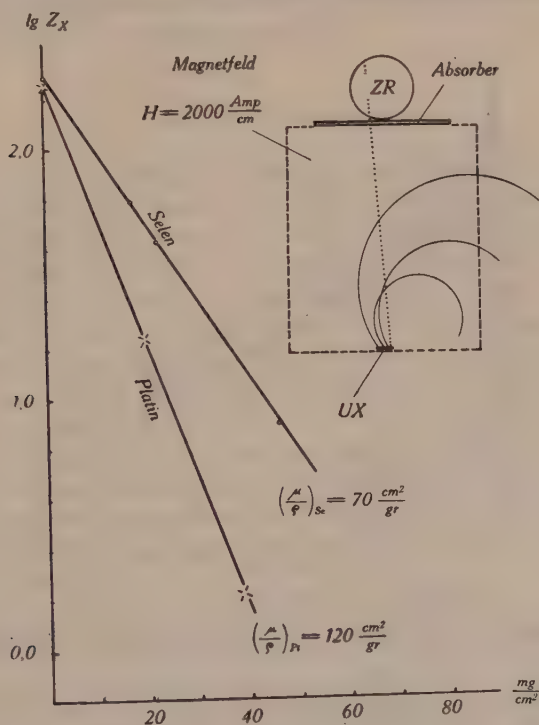


Fig. 2.

Absorption der vom UX emittierten Pa-L-Röntgenstrahlung in Selen und Platin.

eines Elektromagneten, in dessen Feld die Zerfallselektronen abgelenkt und so verhindert werden, ins Zählrohr zu gelangen. Die in Fig. 2 als Ordinate aufgetragene Stosszahl ist die gemessene Stosszahl nach Abzug des Untergrunds der  $\gamma$ -Strahlung. In einem dünnwandigen Aluminiumzählrohr, gefüllt mit 100 mm



Hg Argon plus 10 mm Hg Alkohol, ist die durch die Pa-L-Strahlung bewirkte Stosszahl zum Beispiel 3,2-mal grösser als die Stosszahl, die von allen härteren Komponenten der  $\gamma$ -Strahlung zusammen bewirkt wird.

Dass die weiche Quantenstrahlung des UX die L-Röntgenstrahlung des UX<sub>2</sub> ist, zeigen Absorptionsmessungen mit verschiedenen kritischen Absorbern. Die starke Absorption in Selen ( $\mu/\rho = 70 \text{ cm}^2/\text{g}$ ) zeigt, dass die Wellenlänge der Strahlung kürzer ist als die K-Kante des Sells bei 0,9777 Å, und die Werte der Absorptionskoeffizienten entsprechen, bei Berücksichtigung der nicht-idealen Geometrie, einer effektiven Wellenlänge, die zwischen

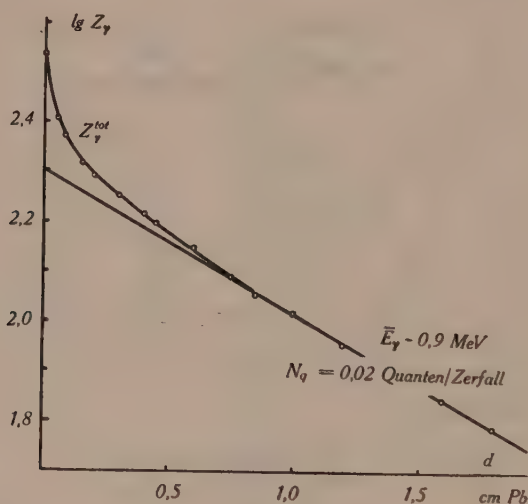


Fig. 3.

Absorption der UX- $\gamma$ -Strahlung in Blei.

Unzerlegte Absorptionskurve. (Zählrohr mit 0,5 mm Bleikathode).

derjenigen der Pa-L <sub>$\alpha$</sub> -Strahlung (0,93–0,94 Å) und derjenigen der Pa-L <sub>$\beta$</sub> -Strahlung (0,74–0,77 Å) liegt. Bei Verwendung eines Zählrohrs mit sehr dünnem Glimmerfenster konnte auch noch die M-Strahlung des Pa ( $\mu/\rho = 350 \text{ cm}^2/\text{g Al}$ ) nachgewiesen werden.

Die absolute Intensität der Pa-L-Strahlung kann z. B. durch Vergleich mit der Intensität der  $\gamma$ -Strahlung bestimmt werden. Von der mit einem Al-Zählrohr gemessenen Gesamtintensität der  $\gamma$ -Strahlung entfällt fast genau die Hälfte auf die harte Komponente, deren Intensität etwa  $N_q = 2 \cdot 10^{-2}$  Quanten/Zerfall beträgt

(siehe IV<sub>4</sub>). Die Intensität der L-Strahlung ergibt sich somit zu

$$N_L = N_q \cdot 2 \cdot 3,2 \cdot \varepsilon_q / \varepsilon_L = 0,06 \text{ L-Quanten/Zerfall.}$$

$\varepsilon_q = 5,5 \cdot 10^{-3}$ : Sensibilität des Al-Zählrohrs für die harte Komponente der UX- $\gamma$ -Strahlung.

$\varepsilon_L = 1,2 \cdot 10^{-2}$ : mittlere Sensibilität des Zählrohrs für die Linien der Pa-L-Strahlung, berechnet aus der Absorption dieser Strahlung im Füllgas (100 mm Hg Argon + 10 mm Hg Alkohol) des Zählrohrs.

Dieser Wert ist in guter Übereinstimmung mit dem für die absolute Intensität der L-Konversionslinie bestimmten Wert. Die direkte Messung der absoluten Intensität der L-Strahlung mit Hilfe eines geeichten UX-Präparats führte zu einem etwas grösseren Intensitätswert von 0,1 L-Quanten/Zerfall.

#### IV. Die $\gamma$ -Strahlung des UX.

Die UX- $\gamma$ -Strahlung ist offenbar verhältnismässig komplex. Fig. 3 zeigt die unzerlegte Absorptionskurve der  $\gamma$ -Strahlung bis zu Filterdicken von 1,8 cm Pb. Das verwendete UX-Präparat ist auf einem Stück Filterpapier niedergeschlagen, das von genügend dickem Karton umgeben ist, um alle Elektronen zu absorbieren; die äussere Bremsstrahlung kann also vernachlässigt werden. Das Zählrohr, das für die weichen Komponenten möglichst empfindlich sein soll, besitzt eine Bleikathode von 0,5 mm Dicke. Die Absorptionskurve wurde bis zu einer Filterdicke von 3 cm gemessen; hinter 1 cm Blei ist der Abfall praktisch exponentiell, mit einem Absorptionskoeffizienten, welcher, unter Berücksichtigung der nicht-idealen Geometrie (Vergleich mit der Absorptionskurve der Zn<sup>65</sup>- $\gamma$ -Strahlung) einer Quantenenergie von ca. 0,9–1,0 MeV entspricht.

Fig. 4 zeigt die Absorptionskurve der weicherer Komponenten, welche sich aus der Absorptionskurve der Fig. 3 nach Subtraktion des Anteils der harten 0,9 MeV-Komponente ergibt. Diese Absorptionskurve kann in zwei Komponenten mit den Absorptionskoeffizienten 2,5 cm<sup>-1</sup> und 19 cm<sup>-1</sup> zerlegt werden, entsprechend Quantenenergien von 400 keV und 180 keV. Um auch noch die weichste  $\gamma$ -Strahlung, deren Intensität durch die 0,5 mm Pb-Kathode schon zu stark herabgesetzt wird, zu erfassen, wird ein inwendig vergoldetes 0,1 mm Messingzählrohr (Au-Niederschlag von 20 mg/cm<sup>2</sup>) zur Registrierung der  $\gamma$ -Strahlung verwendet. Die mit diesem Zählrohr aufgenommene Absorptionskurve der weichsten Komponenten der UX- $\gamma$ -Strahlung zeigt Fig. 5: Die in

logarithmischem Masstab als Ordinate aufgetragene Stosszahl  $Z_\gamma$  ist die registrierte Stosszahl nach Subtraktion des Beitrages der harten 0,9 MeV-Komponente (10,2% der totalen Stosszahl für Absorberdicke Null) und des Beitrags der 400 keV-Komponente (1,3% der gesamten Stosszahl). Die Absorptionskurve der Fig. 5 zeigt deutlich das Vorhandensein zweier Komponenten an. Die

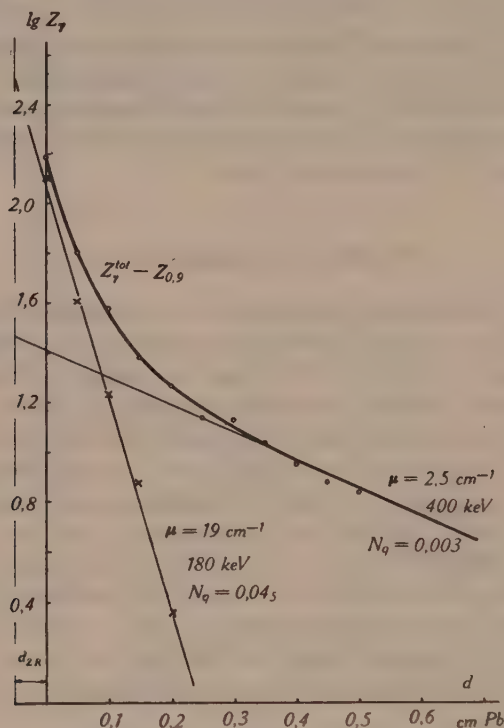


Fig. 4.

*Absorption der UX- $\gamma$ -Strahlung in Blei.*

Absorptionskurve nach Abzug der harten 0,9 MeV-Komponente.

(Zählrohr mit 0,5 mm Bleikathode)

härtere davon ist die 180 keV-Komponente; der Absorptionskoeffizient der weicheren Komponente ist praktisch genau gleich demjenigen der 93,5 keV-Strahlung des  $44,3 \text{ sec-Ag}^{*107, 109}$  (BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>9</sup>), für welche die Absorptionskurve in der gleichen geometrischen Anordnung von Quelle und Absorber gemessen wurde. Diese weichste Komponente ist also die 93 keV- $\gamma$ -Strahlung des  $UX_1$ .

Durch vergleichende Absorptionsmessungen mit Wolfram-, Blei- und Wismutabsorboren wurde verifiziert, dass die weichsten Komponenten der  $UX$ - $\gamma$ -Strahlung in der Tat energiereicher als die K-Kante des Wismuts bei 90,6 keV sind.

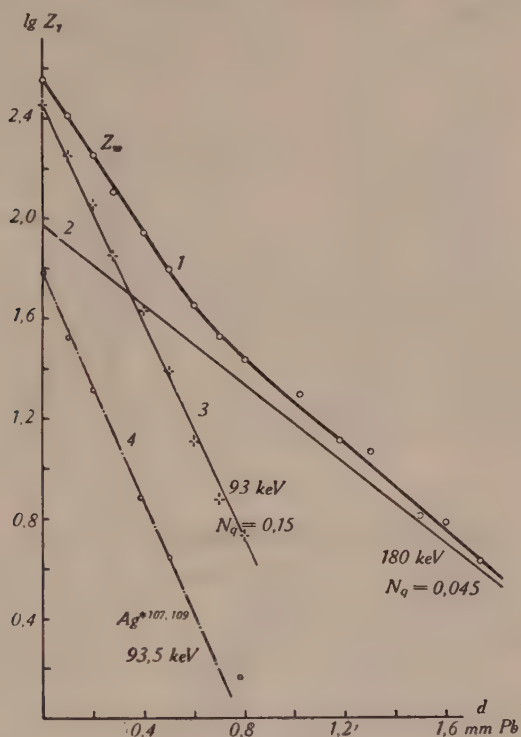


Fig. 5.

Absorption der  $UX$ - $\gamma$ -Strahlung in Blei.  
(Zählrohr mit 20 mg/cm<sup>2</sup> Goldkathode)

- 1) Absorptionskurve nach Abzug der harten 0,9 MeV-Komponente (10,2%) und der 0,4 MeV-Komponente (1,3%).  $Z_w = Z^{\text{tot}} - Z_{0,9} - Z_{0,4}$ .
  - 2) Absorptionskurve der 180 keV-Komponente (21%).
  - 3) Restintensität nach Abzug der härteren Komponenten: Absorptionskurve der 93 keV-Strahlung des  $UX_1$  (67,5%).
  - 4) Vergleichskurve: Absorption der 93,5 keV-Strahlung des 44,3 sec  $Ag^{*107, 109}$ .
- Die in Klammern angegebenen Prozentzahlen geben die relative Intensität der einzelnen Komponenten der Absorptionskurve, bezogen auf  $Z^{\text{tot}}(0) = 100\%$ , für Absorberdicke Null an.

Wir geben im Folgenden Intensität und Zuordnung der verschiedenen Komponenten der  $UX$ - $\gamma$ -Strahlung an. Dabei ist zu beachten, dass die  $\gamma$ -Linien auf dem kontinuierlichen Untergrund



der inneren Bremsstrahlung (Fig. 6; vgl. auch BRADT, HEINE und SCHERRER<sup>10)</sup>) erscheinen, deren Intensität, insbesondere für die kleinen Energien, gegenüber der Intensität der Kern- $\gamma$ -Strahlung nicht zu vernachlässigen ist.

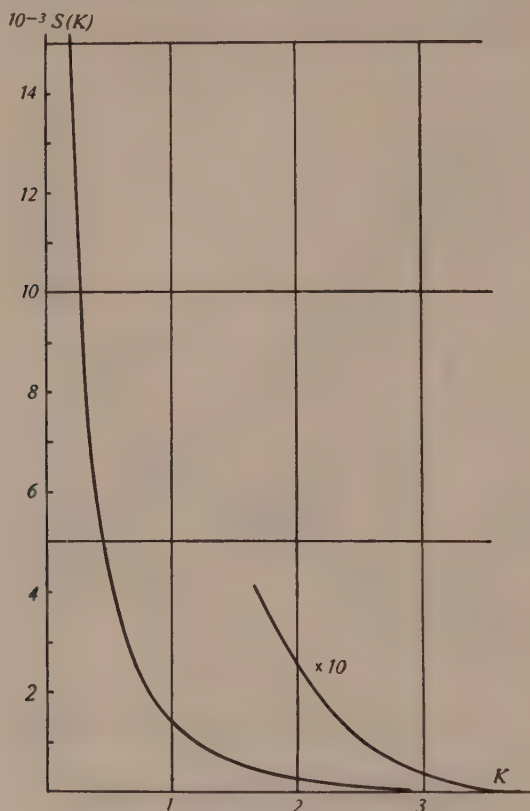


Fig. 6.

Spektrum der inneren Bremsstrahlung des  $UX_2$   
nach KNIPP und UHLENBECK.

$k = \frac{h\nu}{mc^2}$      $S(k) dk = \text{Zahl der Quanten im Intervall } k \dots k+dk \text{ pro Zerfall.}$

I) Bestimmung der absoluten Intensität der 93 keV- $\gamma$ -Strahlung des  $UX_1$ .

Um durch eine Zählrohr-Intensitätsmessung die Anzahl der pro Zerfall vom  $UX_1$  ausgesandten 93 keV-Quanten zu bestimmen, müssen wir sowohl die Zählrohrsensibilität als auch die Anzahl der pro sec zerfallenden  $UX_1$ -Atome im verwendeten Präparat kennen. Die Sensibilität des Goldzählrohrs für  $\gamma$ -Strahlung einer Quanten-

energie von 93 keV beträgt nach BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>11)</sup>  $\epsilon_{0,093} = 1,2 \cdot 10^{-2}$ . Das UX<sub>1</sub>-Präparat wurde durch Auflösen von 100 g reinstem UO<sub>2</sub>(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> + 6H<sub>2</sub>O in Äther, Ausschütteln mit Wasser und Ausfällung des UX mit einigen mg Cer als Trägersubstanz hergestellt. Alle Verluste wurden durch sorgfältige Kontrolle jeder Operation durch Aktivitätsmessungen genau bestimmt. 100 g Uranylнитrat enthalten 47,4 g Uran, in dem pro sec  $5,6 \cdot 10^5$  Atome jedes im radioaktiven Gleichgewicht vorhandenen Folgeprodukts zerfallen. Zur Zeit der Messung betrug die Intensität des Präparats  $N = 3,52 \cdot 10^5$  Zerfallsprozesse pro sec. Ist  $n$  die gesuchte Zahl der pro Zerfall des UX<sub>1</sub> ausgesandten Quanten der 93 keV- $\gamma$ -Linie, so berechnet sich aus dem nützlichen Raumwinkel ( $\Omega/4\pi = 0,185$ ), der Absorption der  $\gamma$ -Strahlung in der Zählrohrwand und dem eingeschalteten 4 mm-Aluminiumfilter (die Elektronen wurden in Karton absorbiert) die Zahl der das Innere des Zählrohrs durchsetzenden 93 keV-Quanten zu  $4,5_2 \cdot 10^4 \cdot n$  Quanten/sec. Registriert wurden mit einem 32-fach Untersetzter 116 Zählrohrimpulse/sec, wovon nach Fig. 5 67,5% der 93 keV-Linie zuzuordnen sind. Die absolute Intensität der Linie ergibt sich somit zu

$$n_{0,093} = \frac{0,675 \cdot 116}{1,2 \cdot 10^{-2} \cdot 4,5_2 \cdot 10^4} = 0,15 \text{ Quanten/Zerfall UX}_1.$$

Die Unsicherheit dieses Werts dürfte alles in allem etwa 15% betragen. Die Intensität der übrigen Komponenten werden wir, unter Berücksichtigung der Variation der Zählrohrsensibilität mit der Quantenenergie, an diesen Wert anschliessen.

## 2) Die 180 keV-Komponente der Absorptionskurve der UX- $\gamma$ -Strahlung.

Die Intensität dieser Komponente berechnet sich auf Grund von Fig. 5 durch Vergleich mit der 93 keV-Komponente zu  $n_{0,180} = 0,04_5$  Quanten/Zerfall. Die Zuordnung dieser Komponente der (UX<sub>1</sub> + UX<sub>2</sub>)- $\gamma$ -Strahlung wurde von uns nicht untersucht; nach HAHN und MEITNER<sup>12)</sup> ist sie dem UX<sub>1</sub> zuzuordnen.

## 3) Die 400 keV-Komponente.

Die Intensität dieser Komponente ergibt sich zu  $n_{0,40} = 3 \cdot 10^{-3}$  Quanten/Zerfall. Diese sehr schwache Komponente ist etwa zu gleichen Teilen der inneren Bremsstrahlung des UX<sub>2</sub> und der beim Übergang des isomeren UX<sub>2</sub> in den Grundzustand UZ des Pa<sup>234</sup> emittierten 0,394 MeV- $\gamma$ -Strahlung zuzuordnen (vgl. BRADT und SCHERRER<sup>13)</sup>).

4) Die harte UX- $\gamma$ -Strahlung.

Der Absorptionskoeffizient der harten UX- $\gamma$ -Strahlung ist von STAHEL und COUMOU<sup>14)</sup> zu  $\mu_{\text{Pb}} = 0,83 \text{ cm}^{-1}$  bestimmt worden, welcher Wert nach GENTNER<sup>15)</sup> einer Quantenenergie von 0,9 MeV entspricht. Um diese harte Komponente der UX- $\gamma$ -Strahlung noch weiter zu analysieren, haben wir nach der Methode von

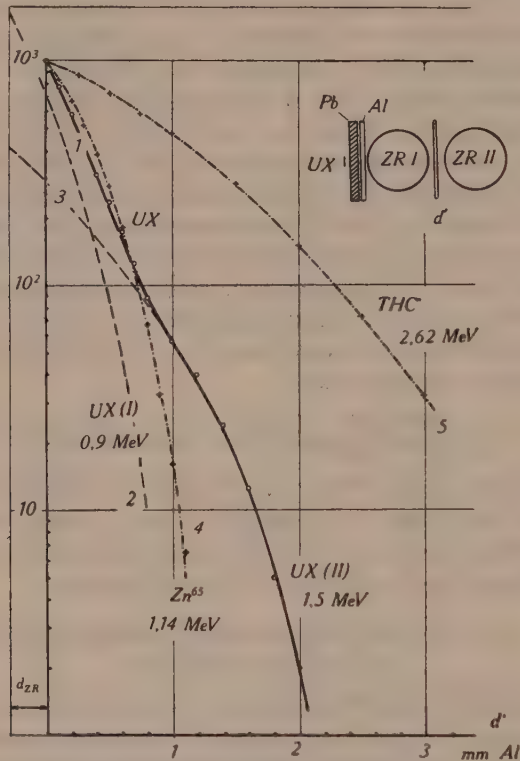


Fig. 7.

Absorptionskurve der Sekundärelektronen der UX<sub>2</sub>- $\gamma$ -Strahlung.

- 1) Absorptionskurve der Sekundärelektronen der UX- $\gamma$ -Strahlung.  
(Der Untergrund von 0,3% der Anfangsintensität für  $d' = 0$  ist subtrahiert.)
- 2) Komponente I: Quantenenergie: 0,8–0,9 MeV  
Intensität: 0,02 Quanten/Zerfall.
- 3) Komponente II: Quantenenergie: 1,5 MeV  
Intensität: 0,002 Quanten/Zerfall.
- 4) Vergleichskurve zur Eichung: Sekundärelektronen der 1,14 MeV- $\gamma$ -Strahlung des Zn<sup>65</sup>.
- 5) „ „ „ Sekundärelektronen der 2,62 MeV- $\gamma$ -Strahlung des ThC''.

BOTHE mit einem Koinzidenzzählrohrpaar (Wandstärke der Zählrohre 0,12 mm Aluminium) die Absorption der aus einer Al-Platte ausgelösten Sekundärelektronen gemessen (Fig. 7). Die Sekundärelektronen der weichenen Komponenten geben zu der Absorptionskurve der Fig. 7 keinen Beitrag, da sie nicht energiereich genug

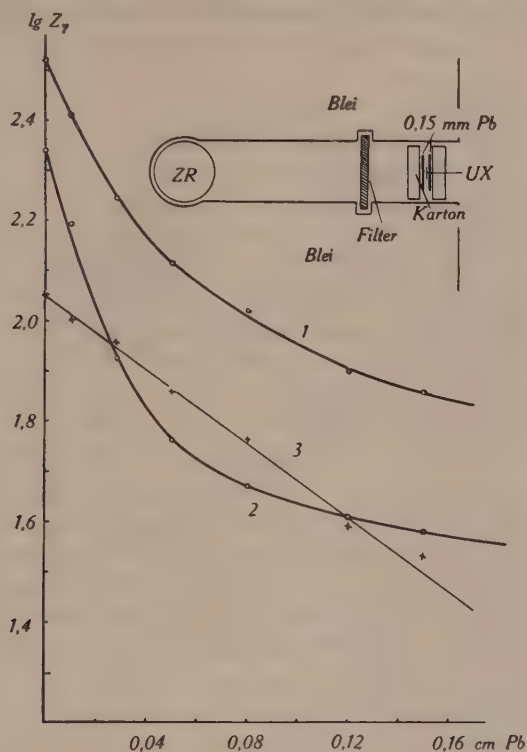


Fig. 8.

In Blei erregte Bremsstrahlung der UX-Elektronen.

- 1) UX-Quelle beidseitig mit 0,15 mm Pb-Folien bedeckt
- 2) UX-Quelle nur von Karton bedeckt
- 3) Differenzkurve: Absorptionskurve der in 0,15 mm Pb erregten Bremsstrahlung. (Zählrohr mit 40 mg/cm<sup>2</sup> Au-Kathode.)

sind, um die Zählrohrwände zu durchdringen. Fig. 7 zeigt deutlich, dass auch noch die harte UX- $\gamma$ -Strahlung komplex ist. Die Reichweite der Sekundärelektronen beträgt  $R = (2,4 \pm 0,1)$  mm Al, entsprechend einer Quantenenergie der härtesten  $\gamma$ -Komponente von  $(1,50 \pm 0,05)$  MeV. Nach BLEULER und ZÜNTZ<sup>16)</sup> kann die logarithmische Absorptionskurve der Fig. 7 in zwei Komponenten von



$E_1 = (0,8-0,9)$  MeV und  $E_2 = 1,5$  MeV zerlegt werden, wobei sich die Intensitäten dieser Komponenten verhalten wie

$$N_{0,9} : N_{1,5} = 9,3 : 1.$$

Vergleich mit der Intensität der 93 keV-Linie ergibt für die Intensität der  $(0,8-0,9)$  MeV-Komponente den Wert  $N_{0,9} = 2 \cdot 10^{-2}$  Quanten/Zerfall, somit  $N_{1,5} = 2 \cdot 10^{-3}$  Quanten/Zerfall. Abgesehen

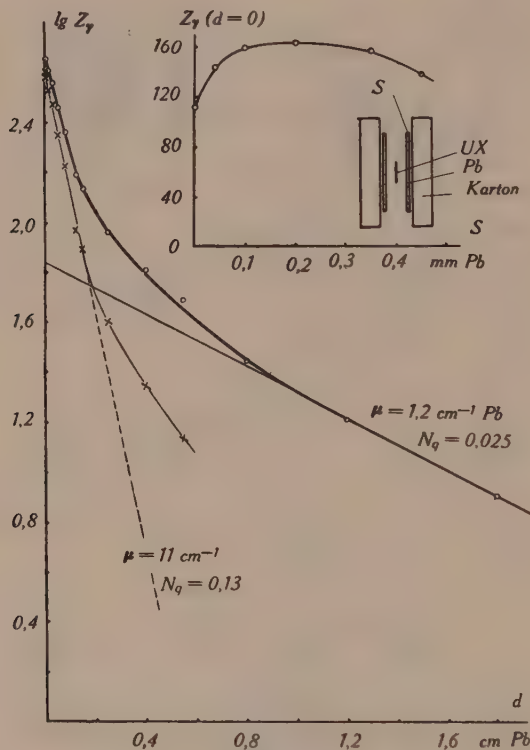


Fig. 9.

Absorptionskurve der in einer 0,15 mm Bleifolie erregten Bremsstrahlung der UX-Elektronen.

(Zählrohr mit 40 mg/cm<sup>2</sup> Goldkathode)

Rechts oben: Variation der ohne sonstige Absorber registrierten  $\gamma$ -Intensität mit der Dicke  $s$  der das UX-Präparat bedeckenden Bleifolie.

von dem hier verhältnismässig geringen Beitrag der inneren Bremsstrahlung handelt es sich bei den beiden harten Komponenten um Kern- $\gamma$ -Linien des UX<sub>2</sub>.

5) Die in Blei erregte Bremsstrahlung der  $UX_2$ -Elektronen.

Bei den bisherigen Intensitätsmessungen waren die Zerfallselektronen des  $UX$  stets in Karton absorbiert worden; die relative Intensität der äusseren Bremsstrahlung war somit vernachlässigbar klein. Werden die  $UX$ -Elektronen in einem schweren Material (Blei) absorbiert, so ist, wie Fig. 8 zeigt, die Intensität der äusseren Bremsstrahlung von der gleichen Grössenordnung wie die Intensität der  $UX$ -Kern- $\gamma$ -Strahlung. Fig. 9 zeigt die Absorptionskurve der in einer 0,15 mm Bleifolie erzeugten Bremsstrahlung. Um ihre Intensität abzuschätzen, können wir sie nach exponentiellen Komponenten analysieren. Dem härteren Teil des Spektrums der in Blei erregten Bremsstrahlung entspricht ein Absorptionskoeffizient von ca.  $1,2 \text{ cm}^{-1} \text{ Pb}$ , entsprechend einer effektiven Quantenenergie von etwa 700 keV (vgl. STAHEL und KIPFER<sup>17</sup>). Die Intensität dieser harten Komponente beträgt  $2,5 \cdot 10^{-2}$  Quanten/Zerfall. Dem weicheren Teil des kontinuierlichen Spektrums der in Blei erregten Bremsstrahlung entspricht ein Absorptionskoeffizient von ca.  $11 \text{ cm}^{-1}$ , entsprechend einer effektiven Quantenenergie von etwa 230 keV. Die Intensität dieser intensiven weichsten Komponente der Absorptionskurve der äusseren Bremsstrahlung beträgt 0,13 Quanten/Zerfall.

Die spektrale Energieverteilung der *inneren Bremsstrahlung* ist der spektralen Energieverteilung der in Pb erregten Bremsstrahlung ähnlich. Die Analyse der Absorptionskurve der in Pb erregten Bremsstrahlung (Fig. 9) lässt also den Schluss zu, dass der Beitrag der inneren Bremsstrahlung zur Intensität der 93 keV-Komponente der Absorptionskurve der  $UX$ - $\gamma$ -Strahlung sicher gering ist. In der Tat ist die berechnete Intensität des weichsten Teils des Spektrums der inneren  $UX$ -Bremsstrahlung klein gegenüber der gemessenen Intensität der 93 keV-Komponente.

V. Der Konversionskoeffizient der 93 keV- $\gamma$ -Linie des  $UX_1$ .

Mit den bekannten Intensitäten der Konversionslinien und der unkonvertierten 93 keV- $\gamma$ -Strahlung können wir nunmehr den Konversionskoeffizienten  $N^e/N^a$  der 93 keV-Strahlung angeben. Er beträgt für die  $L_I$ -Schale

$$(N^e/N^a)_{L_I} = 0,34,$$

für die  $M_I$ - und  $N_I$ -Schale zusammen

$$(N^e/N^a)_{M+N} = 0,07.$$

Der experimentelle Wert des Konversionskoeffizienten für die  $L_I$ -Schale  $(N^e/N^g)_{L_I}$  ist innerhalb der Messgenauigkeit gleich dem theoretischen Wert für 93 keV-Quadrupolstrahlung (Fisk<sup>18</sup>).

Die Anregungswahrscheinlichkeit des 93 keV-Niveaus des  $UX_2$ -Kerns ergibt sich aus den Intensitäten der Konversionslinien und der unkonvertierten Strahlung zu  $p = 20\%$ .

### Literatur.

- 1) L. MEITNER, Zeitschr. für Physik **17**, 54 (1923).
- 2) L. MEITNER, Handbuch der Physik XX<sub>1</sub>, Berlin 1933.
- 3) E. RUTHERFORD, J. CHADWICK und C. D. ELLIS, Radiations from Radioactive Substances, Cambridge 1930.
- 4) L. MEITNER, Zeitschr. für Physik **52**, 637 (1928).
- 5) M. FRILLEY, Comptes Rendus **206**, 1013 (1938).
- 6) J. SURUGUE und TSIEN-SAN-TSIANG, Comptes Rendus **213**, 172 (1941).
- 7) S. ROSENBLUM und C. CHAMÉ, Comptes Rendus **196**, 1663 (1933).
- 8) J. S. MARSHALL, Proc. Roy. Soc. **173**, 391 (1939).
- 9) H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **18**, 256 (1945).
- 10) H. BRADT, H. G. HEINE und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **16**, 455 (1943).
- 11) H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **19**, 77 (1946).
- 12) O. HAHN und L. MEITNER, Zeitschr. für Physik **17**, 157 (1923).
- 13) H. BRADT und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **18**, 405 (1945).
- 14) E. STAHEL und D. J. COUMOU, Physica **2**, 707 (1935).
- 15) W. GENTNER, Journ. de phys. **6**, 274 (1935).
- 16) E. BLEULER und W. ZÜNTI, Helv. Phys. Acta **19**, 375 (1946).
- 17) E. STAHEL und P. KIPFER, Helv. Phys. Acta **9**, 492 (1936).
- 18) J. B. FISK, Proc. Roy. Soc. **143**, 674 (1933).

# Ein Beitrag zum Deuteronproblem

von Felix Villars.

(20. Juni 1946.)

Die tiefsten Zustände des zwei-Nukleon-Systemes werden untersucht im Rahmen einer Mesontheorie, die die Existenz "isobarer Zustände" des Systemes vorsieht (starke Kopplung). Besondere Beachtung findet der Einfluss der Tensorkraft. Es zeigt sich, dass der von der Erfahrung geforderte Abstand der Bindungsenergien der beiden „ $S$ -Zustände“ ( $^3S$  und  $^1S$ ) die Anregungsenergie der Isobaren auf Werte  $> 200$  MeV beschränkt. In diesem Falle sind letztere ohne wesentlichen Einfluss auf die Anisotropie der Proton-Neutron-Streuung.

## I. Einleitung.

Bis jetzt haben sich jedem Versuch, zu einer quantitativ befriedigenden Deuterontheorie zu gelangen, grosse Schwierigkeiten in den Weg gestellt; dies auch, wenn man sich, wie das im folgenden geschehen soll, auf den „mechanischen“ Aspekt des Problemes beschränkt und feinere Fragen (magnetische Momente) vorläufig beiseite schiebt. Es verbleiben dann im wesentlichen vier Punkte, die eine mit der Erfahrung übereinstimmende Darstellung erfordern. Dies sind die Bindungsenergien der zwei untersten Deuteronzustände ( $^3S$  und  $^1S$ ), das elektrische Quadrupolmoment des erstern und die für die Anisotropie der Proton-Neutron-Streuung massgebende  $P$ -Wechselwirkung. Die grösste Schwierigkeit bereitet jeweils der zuletzt genannte Punkt. Eine rechnerische Betrachtung zeigt nämlich, dass die Anisotropie in geradezu ausserordentlich empfindlicher Weise von der Stärke der  $P$ -Wechselwirkung abhängt. Im allgemeinen sind aber die Konstanten der Kraftansätze bereits festgelegt durch die Forderung, die Deuteron  $S$ -Zustände richtig zu beschreiben. Übergang zu  $P$ -Zuständen bedeutet dann Paritätswechsel der räumlichen Eigenfunktionen; genaue Kenntnis der Streuanisotropie ergäbe demnach die Möglichkeit, die einzelnen Wechselwirkungsansätze auf Grund ihres charakteristischen Verhaltens bei Paritätswechsel der Eigenfunktion zu begutachten. Leider sind die Ergebnisse der Anisotropiemessungen<sup>1)</sup> nicht von der ihrer Wichtigkeit entsprechenden Genauigkeit; es soll weiter unten auseinandergesetzt werden, dass sogar Gründe dafür bestehen, gewisse Ergebnisse in quantitativer



Hinsicht stark anzuzweifeln, wogegen sie qualitativ durchaus richtig sein mögen.

Den Vorzug genießen aus grundsätzlichen und experimentellen Erwägungen die Ansätze, die zu ladungsunabhängigen Kräften führen (ladungssymmetrische Theorien). Ein Charakteristikum dieser Ansätze ist aber — etwas grob ausgedrückt — der Vorzeichenwechsel der Kräfte bei Paritätswechsel, d. h. zu den gezwungenermaßen anziehenden  $S$ -Potentialen gehören abstossende  $P$ -Potentiale. Der Sachverhalt wird indessen etwas komplizierter, falls man eine Wechselwirkung vom Typus der Spin-Bahn-Kopplung (Tensorkraft) hinzuzieht, was zur Deutung des elektrischen Quadrupolmomentes ( $Q$ ) erforderlich ist. Die Tensorkraft spaltet nämlich die Triplett- $P$ -Terme auf (wobei die Lage des „Schwerpunktes“ erhalten bleibt); in der symmetrischen Theorie ergibt sich der  ${}^3P_0$ -Term als der tiefstliegende, falls man das Vorzeichen der Tensorkraft der Forderung, dass  $Q$  positiv ist, anpasst. (Im Sinne einer Mesontheorie mit Vektor- und Pseudoskalarfeld bedeutet ein positives  $Q$ , dass das vektorielle Meson das schwerere ist; vgl. <sup>2)</sup>). Die Messungen<sup>1)</sup> deuten nun übereinstimmend darauf hin, dass die massgebenden  $P$ -Potentiale anziehend sind; dies ist aber in der symmetrischen Theorie in Anbetracht des kleinen Gewichtes des  ${}^3P_0$ -Termes nicht der Fall. Dieser Ansatz lässt also anscheinend nur die Alternative zu, dass entweder das Quadrupolmoment des Deuteron-Grundzustandes oder aber die Anisotropie der Proton-Neutron-Streuung das falsche Vorzeichen erhält\*).

Diesem Einwand ist nun aber die symmetrische Theorie im Grenzfall „starker Kopplung“ wenigstens prinzipiell nicht ausgesetzt<sup>3)</sup>. Die in diesem Falle auftretenden angeregten Zustände (Isobaren) bewirken nämlich eine Verschiebung der adiabatischen Potentiale im Sinne stärkerer Anziehung und dies um so mehr, je kleiner die Anregungsenergie der Isobaren ist. So werden speziell bei genügend kleiner Isobarananregungsenergie die  $P$ -Potentiale durchwegs anziehend. Falls also die übrigen Daten des Deuterons die Annahme einer hinreichend kleinen Anregungsenergie zulassen, darf man erwarten, dass die Streuanisotropie dadurch wesentlich in Richtung auf die experimentell geforderten Werte hin verbessert wird.

---

\*) Die Anisotropie  $A$  sei hier definiert durch  $A = (\sigma(0) - \sigma(\pi)) / \sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$ , wo  $\vartheta$  den Streuwinkel im Schwerpunktsystem und  $\sigma(\vartheta)$  den entsprechenden Streuquerschnitt bedeutet. Vorwärts (Rückwärts-)streuung im Schwerpunktsystem ist dann charakterisiert durch  $A > 0$  ( $A < 0$ ).

In dieser Arbeit soll nun vorerst der Einfluss der Isobaren auf die untersten Deuteronzustände untersucht werden; es wird sich also in erster Linie darum handeln, zu sehen, ob und wie weit die Anregungsenergie der Isobaren durch die Daten der bekannten  $S$ -Zustände nach unten begrenzt wird; alsdann soll untersucht werden, wie weit zulässige Werte dieser Grösse ihren Einfluss auf die Lage der  $P$ -Terme geltend machen.

## II. Hamiltonfunktion des Zweikörpersystemes; Variationsverfahren zur Auflösung der Schrödingergleichung.

Das in Rede stehende Modell ist an anderer Stelle schon eingehend diskutiert worden<sup>4)</sup>. Es seien deshalb hier lediglich die Variablen des Zweikörpersystemes und die Hamiltonfunktion des besagten Modelles angegeben:

$j_1 m_1 n_1$  und  $j_2 m_2 n_2$  sind die Quantenzahlen der beiden Nukleonkreisel,

$J$  und  $M$  der Gesamts Spin des Systemes und seine Komponente,

$K$  und  $N$  der gesamte isotope Spin und dessen Komponente;

$N + 1$  stellt die Ladung des Systemes dar.

Es gilt die Ungleichung

$$|j_1 - j_2| \leq J_K \leq j_1 + j_2. \quad (1)$$

$J$  setzt sich mit dem Bahndrehimpuls  $L$  des Systemes zusammen zum Gesamtdrehimpuls  $I$  (Komponente  $M_I$ ); es gilt

$$|J - L| \leq I \leq J + L. \quad (2)$$

Die Hamiltonfunktion ist diagonal bezüglich  $I, M_I, K, N$ ; für jeden Satz dieser Zahlen ist sie die folgende Matrix bezüglich der übrigen Variablen:

$$\begin{aligned} & (J L j_1 j_2 | H | J' L' j_1' j_2') = \\ & \left\{ \frac{\hbar^2}{M} \left( \frac{-d^2}{dr^2} + \frac{L(L+1)}{r^2} \right) + \frac{\epsilon}{2} \left[ \left( j_1 + \frac{1}{2} \right)^2 + \left( j_2 + \frac{1}{2} \right)^2 - 2 \right] \right\} (J L j_1 j_2 | 1 | J' L' j_1' j_2') \\ & + V(r) (j_1 j_2 J | \Omega | j_1' j_2' J) \cdot (J L | 1 | J' L') \\ & + U(r) (J L j_1 j_2 | T' | J' L' j_1' j_2'). \end{aligned} \quad (3)$$

Die Matrizen  $\Omega$  und  $T'$  ( $T' = T - 1/3 \Omega$  in der Bezeichnung von FIERZ, s. u.) sind von FIERZ<sup>5)</sup> berechnet worden. Über die statischen Potentiale  $U(r)$  und  $V(r)$  gibt die Mesontheorie für nicht zu kleine Abstände der Nukleonen ( $r \gg g$ , wo  $g$  die Kopplungskonstante bedeutet) bestimmte Aussagen. Des weiteren sind durch

die Bedingung starker Kopplung:  $g \gg a$  im physikalisch interessanten Fall  $a\mu \ll 1$  ( $a$ : Ausdehnung des Nukleons,  $\mu \cdot \hbar/c$ : Mesonmasse) allzugrosse Werte von  $\varepsilon$  ausgeschlossen (vgl. <sup>6)</sup>). Wir wollen aber hier so vorgehen, dass wir über die Potentiale  $U(r)$  und  $V(r)$  sowie über die Konstante  $\varepsilon$  vorerst frei verfügen; insbesondere behalten wir uns vor,  $U$  und  $V$  durch Kastenpotentiale ( $U, V = \text{const. für } r < r_0, = 0 \text{ für } r > r_0$ ) passend gewählter Tiefe zu approximieren. Auf Grund der so durchgeführten Rechnungen mag dann diskutiert werden, wieweit die erhaltenen Ergebnisse eine sinnvolle Interpretation im Rahmen der Mesontheorie gestatten.

Die Komponenten der Schrödingerfunktion  $\mathfrak{F}$  bezeichnen wir mit  $F_{JLj_1j_2}(r)$  und erhalten demnach als Schrödingergleichung:

$$\left\{ -\frac{\hbar^2}{M} \left( \frac{d^2}{dr^2} - \frac{L(L+1)}{r^2} \right) + \frac{\varepsilon}{2} \left[ \left( j_1 + \frac{1}{2} \right)^2 + \left( j_2 + \frac{1}{2} \right)^2 - 2 \right] - E \right\} F_{JLj_1j_2}(r) \\ + \sum_{J' L' j'_1 j'_2} \{ V(r) (j_1 j_2 J | \Omega | j'_1 j'_2 J) \delta_{JJ'} \delta_{LL'} + U(r) (JL j_1 j_2 | T' | J' L' j'_1 j'_2) \} F_{J' L' j'_1 j'_2}(r) = 0. \quad (4)$$

Die Matrix  $\Omega$  koppelt die Werte  $j_1 - j'_1 = 0, \pm 1$  und  $j_2 - j'_2 = 0, \pm 1$ . (Sie ist natürlich, wie auch  $T'$ , symmetrisch in  $j_1$  und  $j_2$ .) Die Matrix  $T'$  koppelt mit  $J, L, j_1, j_2$  die Zustände  $J' = J, J \pm 2, L' = L, L \pm 2, j'_1 = j_1, j_1 \pm 1$  und  $j'_2 = j_2, j_2 \pm 1$ . Die beiden Ungleichungen (1) und (2) entscheiden aber letztthin, welche Matrixelemente wirklich auftreten. Über das Verhalten der  $F_{JLj_1j_2}(r)$  gegenüber einer Vertauschung von  $j_1$  und  $j_2$  gibt das Pauliprinzip die Vorschrift

$$F_{JLj_1j_2}(r) = (-1)^{J+K+L+1} \cdot F_{JLj_2j_1}(r).$$

Insbesondere gilt für  $j_1 = j_2$  (etwa im Falle  $J = 0$  oder  $K = 0$ ) die Bedingung:  $J + K + L$  muss ungerade sein.

Eine exakte Lösung der Gleichung (4) dürfte unmöglich sein. Wie schon bemerkt erleichtern wir uns die Aufgabe durch die Annahme von Kastenpotentialen gleicher Reichweite  $r_0$  für  $U$  und  $V$ . In dem durch  $r > r_0$  definierten Aussenraum ist dann das Gleichungssystem (4) entkoppelt; für diesen Bereich sind exakte Lösungen angebbar. Im Innenraum  $r < r_0$  liegt ein System simultaner Gleichungen mit zunächst unbeschränkter Komponentenanzahl vor. Das Problem lässt sich jedoch aus den folgenden Gründen reduzieren: Gehen wir aus von der Annahme, dass  $\varepsilon$  nicht zu klein ist. (Diese Aussage soll weiter unten präzisiert werden.) In diesem Falle nehmen mit wachsenden  $j_1, j_2$  die Amplituden der entsprechenden  $F$ -Komponenten rasch ab; von bestimmten Werten  $j_1, j_2$

an wird man daher die  $F_{JLj_1j_2}(r)$  näherungsweise Null setzen dürfen. Grosse Werte von  $J$  bedingen wegen (1) grosse Werte von  $j_1$  oder  $j_2$  und grosse Werte von  $L$  sind wegen (2) mit grossen  $J$  kombiniert, da in den interessierenden Fällen  $I$  klein ist ( $I = 0, 1$  oder  $2$ ). Dazu wirkt für  $L > 0$  das der Zentrifugalkraft entsprechende Glied  $\sim L(L+1)/r^2$  im gleichen Sinne wie die Isobarenenergie. Aus diesen Gründen kann man näherungsweise die Schrödingergleichung im Innenraum auf ein endliches System reduzieren. Bezeichnen wir für das folgende die Gesamtheit der Indices  $JLj_1j_2$  mit  $s$  und schreiben wir abkürzend  $H_{ss'}$  für  $(s|H|s')$  (und  $H_s$  für  $(s|H|s)$ ), so lautet das reduzierte System (4) für den Innenraum  $r < r_0$ :

$$\sum_s H_{ss'} F_{s'}(r) = E \cdot F_s(r). \quad (5)$$

Dieser Gleichung ist äquivalent das folgende Variationsproblem: Es soll die Variation von

$$(\bar{H}^i - E \cdot N^i) \equiv \sum_s \int_0^{r_0} dr F_s(r) \sum_{s'} (H_{ss'} - E \delta_{ss'}) F_{s'}(r) \quad (6)$$

verschwinden, falls die zu variierenden  $F_s(r)$  den Randbedingungen

$$F_s(0) = \delta F_s(0) = 0$$

und

$$\left( \frac{d}{dr} \log F_s(r) \right)_{r_0} = \left( \frac{d}{dr} \log \delta F_s(r) \right)_{r_0} = -\kappa_s \quad (7)$$

genügen. ( $\kappa_s$  ist bestimmt durch die Lösung von (4) im Aussenraum.) In der Tat folgt aus (6) und (7):

$$\delta(\bar{H}^i - EN^i) = 2 \sum_s \int_0^{r_0} dr \delta F_s(r) \sum_{s'} (H_{ss'} - E \delta_{ss'}) F_{s'}(r). \quad (8)$$

Die  $F_s(r)$  sollen nun approximiert werden durch den Ansatz

$$F_s(r) = \sum_n a_s^{(n)} u_s^{(n)}(r), \quad (9)$$

wobei die  $a_s^{(n)}$  zu variierende Parameter und die  $u_s^{(n)}(r)$  vorgegebene Funktionen sind, die die Randbedingungen

$$u_s^{(n)}(0) = 0 \quad \text{und} \quad \left( \frac{d}{dr} \log u_s^{(n)}(r) \right)_{r_0} = -\kappa_s \quad (7')$$

erfüllen. Die Forderung

$$\frac{\partial}{\partial a_s^{(n)}} (\bar{H}^i - EN^i) = 0$$



führt dann auf das in den  $a_s^{(n)}$  lineare Gleichungssystem

$$\sum_{s'} \sum_{n'} a_{s'}^{(n')} \int_0^{r_0} dr u_s^{(n)} (H_{ss'} - E \delta_{ss'}) u_{s'}^{(n')} = 0. \quad (10)$$

Zu Gleichung (10) führt aber auch die folgende Interpretation des Variationsverfahrens: Es sei

$$G_s(r) \equiv \sum_{s'} (H_{ss'} - E \delta_{ss'}) F_{s'}(r).$$

Nach (8) ist die Gleichung  $\delta(\bar{H}^i - E \cdot N^i) = 0$  unter Berücksichtigung von (7) einer Orthogonalitätsrelation äquivalent:  $G_s(r)$  soll zu jeder Funktion  $\delta F_s$  orthogonal sein und muss daher identisch Null werden. Die Verwendung des Variationsverfahrens als Näherungsmethode beruht nun gerade darauf, nur zu verlangen, dass  $G_s(r)$  zu endlich vielen Funktionen  $u_s^{(n)}(r)$ , die den Randbedingungen (7') genügen, orthogonal sei:

$$\int_0^{r_0} dr G_s(r) \cdot u_s^{(n)}(r) = 0.$$

Mit dem Ansatz (9) für die  $F_s(r)$  erhält man wieder (10). Ferner gilt, wie man jetzt leicht sieht,  $(\bar{H}^i - E \cdot N^i) = 0$ .\* Es ist aber bei dieser Fassung der Näherungsmethode möglich, von vornherein einen der Parameter  $a_s^{(n)}$ , etwa  $a_\sigma^{(1)}$ , wo  $\sigma$  die „Hauptkomponente“ bedeutet, gleich 1 zu setzen. Dies ist wichtig für den Fall, dass sich die Hauptkomponente im Aussenraum ( $r > r_0$ ) oszillatorisch verhält und daher deren asymptotische Amplitude zu normieren ist. Es ist nämlich in der Tat unwesentlich, ob es sich bei (4) um ein Eigenwertproblem im eigentlichen Sinne oder aber um ein Streuproblem handelt. Im ersteren Falle sind sämtliche Konstanten  $\kappa_s$  (7, 7') durch die exponentiell abfallenden Lösungen im Aussenraum bestimmt, und zwar wird

$$\text{für } L = 0: \kappa_{J_0 j_1 j_2} = \sqrt{\frac{M}{\hbar^2}} \left\{ \frac{\varepsilon}{2} \left[ \left( j_1 + \frac{1}{2} \right)^2 + \left( j_2 + \frac{1}{2} \right)^2 - 2 \right] - E \right\}^{1/2},$$

$$\text{für } L = 2: \kappa_{J_2 j_1 j_2} = 2 + \frac{1 + \kappa_{J_0 j_1 j_2}}{1 + 3/\kappa_{J_0 j_1 j_2} + 3/\kappa_{J_0 j_1 j_2}^2}.$$

---

\*) Hier bedeutet natürlich  $E$  vorerst nur einen Parameter, der sich aber nm so mehr dem Eigenwert des Problems nähert, je besser die  $F_s(r)$  die exakten Lösungen approximieren.

Damit sind durch (10) und die Normierungsbedingung

$$N \equiv \sum_s \int_0^\infty dr F_s^2(r) = 1 \quad (11)$$

alle Koeffizienten  $a_s^{(n)}$  und der Eigenwert  $E$  bestimmbar.

Im Falle eines Streuproblems verhalten sich die Komponenten  $F_{JL\frac{1}{2}\frac{1}{2}}(r)$  ( $J = 0, 1$ ) im Aussenraum oszillatorisch. An Stelle des nun vorgegebenen Wertes von  $E$  sind hier mit Hilfe von (10) die entsprechenden logarithmischen Ableitungen  $\kappa_{JL\frac{1}{2}\frac{1}{2}}$  zu bestimmen; ihr Wert legt die Phasen der gestörten Welle im Aussenraum fest. Das Problem ist aber nur im Falle einer einzigen oszillatorischen Komponente ( $\sigma$ ) durch (10) schon vollständig festgelegt. In diesem Falle gestattet (10) nämlich gerade die Bestimmung der Amplitudenverhältnisse (d. h. der  $a_s^{(n)}$ , falls  $a_\sigma^{(1)} = 1$  gesetzt wurde) und des Wertes von  $\kappa_\sigma$ . Treten hingegen mehrere oszillatorische Komponenten auf, so gibt erst die Ausstrahlungsbedingung die erforderlichen zusätzlichen Randbedingungen zur Bestimmung aller  $\kappa_s$ . (Vgl. auch Anhang 1.)

### III. Der Deuteron-Grundzustand.

Bei Vernachlässigung der Tensorkraft sind  $J$  und  $L$  Quantenzahlen und die beiden tiefsten Eigenwerte  $E$  gehören zu  $K = 0$ ,  $J = 1$ ,  $L = 0$  resp.  $K = 1$ ,  $J = 0$ ,  $L = 0$ . Die beiden energetisch tiefstliegenden Zustände werden also in dieser Näherung ein  $^3S$ - und ein  $^1S$ -Zustand. Die Tensorkraft spaltet diese beiden, in obiger Näherung zusammenfallenden Zustände auf; die Hamiltonfunktion ist nun nicht mehr diagonal bezüglich  $J$  und  $L$  und der Deuteron-Grundzustand ist in diesem Falle zu charakterisieren durch

$$I = 1, \quad K = 0, \quad J \text{ ungerade}, \quad L \text{ gerade}.$$

Die Hauptkomponente dieses Zustandes ist  $JLj = 10^1_2$  ( $^3S$ ; wegen  $K = 0$  ist  $j_1 = j_2 = j$ ). Die Vektorgleichungen (1) und (2) ergeben die möglichen Beimischungen  $JLj$  zur Hauptkomponente:

$$10^3_2, 10^5_2 \dots (^3S); 12^1_2, 12^3_2, \dots (^3D); 32^3_2, 32^5_2, \dots (^7D).$$

Die Isobarenanregungsenergie ist  $3\varepsilon$ . Es sollen nun alle  $F$ -Komponenten mit  $j \geq 5/2$ ,  $J \geq 5$ ,  $L \geq 4$  vernachlässigt werden; eine Diskussion der Bedingungen, unter denen dies erlaubt ist, sei auf den Schluss dieses Abschnittes verspart. Wir geben nachstehend

eine Tabelle der interessierenden Matrixelemente von  $\Omega$  und  $T'$  (nach <sup>5</sup>):

Tabelle 1.

$Jj$	$Jj'$	$(Jj \Omega Jj')$	$JLj$	$J'L'j'$	$(JLj T' J'L'j')$
$1^{1/2}$	$1^{1/2}$	$-\frac{1}{3}$	$10^{3/2}$	$32^{3/2}$	$\frac{4}{75}\sqrt{7}$
$1^{1/2}$	$1^{3/2}$	$\frac{1}{3}\sqrt{5}$		$32^{5/2}$	$-\frac{1}{25}\sqrt{42}$
$1^{3/2}$	$1^{3/2}$	$\frac{11}{15}$	$10^{5/2}$	$12^{3/2}$	$\frac{1}{75}\sqrt{42}$
$1^{3/2}$	$1^{5/2}$	$\frac{1}{5}\sqrt{21}$		$32^{3/2}$	$-\frac{1}{25}\sqrt{1/3}$
$1^{5/2}$	$1^{5/2}$	$\frac{31}{35}$	$12^{1/2}$	$12^{1/2}$	$\frac{2}{9}$
$3^{3/2}$	$3^{3/2}$	$-\frac{3}{5}$		$12^{3/2}$	$-\frac{1}{9}\sqrt{1/5}$
$3^{3/2}$	$3^{5/2}$	$\frac{1}{5}\sqrt{6}$		$32^{3/2}$	$\frac{1}{3}\sqrt{2/35}$
$3^{5/2}$	$3^{5/2}$	$\frac{11}{35}$	$12^{3/2}$	$12^{3/2}$	$\frac{34}{225}$
$JLj$	$J'L'j'$	$(JLj T' J'L'j')$		$12^{5/2}$	$-\frac{1}{25}\sqrt{7/3}$
$10j$	$10j'$	0		$32^{3/2}$	$-\frac{4}{75}\sqrt{2/7}$
$10^{1/2}$	$12^{1/2}$	$-\frac{2}{9}\sqrt{2}$		$32^{5/2}$	$\frac{2}{25}\sqrt{3/7}$
	$12^{3/2}$	$\frac{1}{9}\sqrt{2/5}$	$12^{5/2}$	$12^{6/2}$	$\frac{74}{525}$
	$32^{3/2}$	$-\frac{1}{3}\sqrt{7/5}$		$32^{3/2}$	$\frac{1}{175}\sqrt{2/3}$
$10^{3/2}$	$12^{1/2}$	$\frac{1}{9}\sqrt{2/5}$	$32^{3/2}$	$32^{3/2}$	$\frac{48}{175}$
	$12^{3/2}$	$-\frac{34}{225}\sqrt{2}$		$32^{5/2}$	$-\frac{8}{175}\sqrt{2/3}$
	$12^{5/2}$	$\frac{1}{75}\sqrt{42}$	$32^{5/2}$	$32^{5/2}$	$\frac{752}{3675}$

Es ist wesentlich, zu bemerken, dass hier die Schrödinger-gleichung mit unbekannten Potentialkonstanten  $U$  und  $V$  gelöst werden muss; hingegen sind bekannt der Eigenwert  $E$  (die Bindungsenergie  $-2,17$  MeV des Deuteron-Grundzustandes); eine zweite Bedingung ergibt sich aus der Berücksichtigung des elektrischen Quadrupolmomentes. Seine Existenz ist eine Folge der

D-Beimischungen, deren Ausmass durch die Grösse des Potentials  $U$  der Tensorkraft bestimmt ist. Wir definieren hier wie üblich als Quadrupolmoment den Mittelwert des Operators von

$$\frac{1}{4} (3z^2 - r^2) = \frac{r^2}{4} (3 \cos^2 \vartheta - 1) = r^2 \cdot Q'$$

im Zustand  $M_I = I$ .  $Q'$  ist die folgende Matrix bezüglich  $J$  und  $L$  (vgl. 7):

		$J = 1$		$J = 3$	
		$L = 0$	$L = 2$	$L = 2$	...
$J = 1$	$L = 0$	0	$\sqrt{2}/20$		
	$L = 2$	$\sqrt{2}/20$	$-1/20$		
$J = 3$	$L = 2$			$-1/70$	

Es ist demnach

$$Q = \int_0^\infty dr r^2 \sum_j \sum_{JL} F_{JLj}(r) \sum_{J'L'} (JL | Q' | J'L') F_{J'L'j}(r),$$

im Falle unserer Näherung also

$$Q = \int_0^\infty dr r^2 \left\{ \frac{\sqrt{2}}{10} (F_{10\frac{1}{2}} \cdot F_{12\frac{1}{2}} + F_{10\frac{3}{2}} \cdot F_{12\frac{3}{2}}) - \frac{1}{20} (F_{12\frac{1}{2}}^2 + F_{12\frac{3}{2}}^2) - \frac{1}{70} F_{32\frac{3}{2}}^2 \right\}. \quad (12)$$

Es müssen nun gut zu handhabende Ausdrücke für die Funktionen  $u_s^{(n)}(r)$  (vgl. (9)) gefunden werden. Dazu wird man die Reihenentwicklungen der Lösungen der Schrödingergleichung hinzuziehen, vor allem um das Verhalten bei kleinen  $r$ -Werten klarzulegen. Es ergibt sich folgendes Bild:

$F$ -Komponenten zu  $L = 0$ :  $a_1 r + a_3 r^3 + a_5 r^5 (1 + b_5 \log r) + \dots$

$F$ -Komponenten zu  $L = 2$ :  $\alpha_3 r^3 (1 + \beta_3 \log r) + \alpha_5 r^5 (1 + \beta_5 \log r) + \dots$

Dieses Verhalten bei kleinen  $r$ -Werten kann mit für unsere Zwecke genügender Genauigkeit dargestellt werden durch zwei-parametrische Funktionen

$$F_s(r) = a_s^{(1)} u_s^{(1)}(r) + a_s^{(2)} u_s^{(2)}(r),$$

wobei die  $u_s^{(n)}(r)$  Binome sind, zusammengestellt mit Hilfe von  $r, r^3, r^5$  im Falle  $L = 0$  und  $r^3, r^5, r^3 \cdot \log r$  für  $L = 2$ . Gelegent-



lich, namentlich für schwächere Komponenten, wurde auch nur ein einziger Parameter belassen, der dann also lediglich einen Amplitudenfaktor darstellt. Wir geben nachstehend ein Beispiel eines Satzes von  $F$ -Komponenten (Tabelle 2). Vorerst führen wir die folgenden Bezeichnungen ein:

$$x = \frac{r}{r_0}, \quad \kappa_1^2 = \frac{M r_0^2}{\hbar^2} |E|, \quad \kappa_3^2 = \frac{M r_0^2}{\hbar^2} (3\varepsilon + |E|),$$

$$\langle \kappa \rangle = 1 + \frac{3}{\kappa} + \frac{3}{\kappa^2}, \quad [\kappa] = 2 + \frac{1+\kappa}{\langle \kappa \rangle}.$$

Tabelle 2.

Die  $F$ -Komponenten  $F_{JLj}(x)$ .

$JLj$	Innenraum ( $x < 1$ )	Aussenraum ( $x > 1$ )	Stetigkeits- bedingung
$10^{1/2}$	$a_1 \frac{1}{1-\alpha_1} (x - \alpha_1 x^3)$	$a_1 \cdot e^{-\kappa_1 (x-1)}$	$\alpha_1 = \frac{1+\kappa_1}{3+\kappa_1}$
$12^{1/2}$	$b_{10} \frac{1}{1-\beta_{10}} (x^3 - \beta_{10} x^5) + b_{11} x^3 (1 - \beta_{11} \log x)$	$\frac{(b_{10} + b_{11}) e^{-\kappa_1 (x-1)}}{\langle \kappa_1 \rangle \left( 1 + \frac{3}{\kappa_1 x} + \frac{3}{(\kappa_1 x)^2} \right)}$	$\beta_{10} = \frac{3+[\kappa_1]}{5+[\kappa_1]}$ $\beta_{11} = 3+[\kappa_1]$
$10^{3/2}$	$a_3 \frac{1}{1-\alpha_3} (x - \alpha_3 x^5)$	$a_3 e^{-\kappa_3 (x-1)}$	$\alpha_3 = \frac{1+\kappa_3}{5+\kappa_3}$
$12^{3/2}$	$b_3 x^3 (1 - \beta_3 \log x)$	$b_3 \frac{1+\dots}{\langle \kappa_3 \rangle} e^{-\kappa_3 (x-1)}$	$\beta_3 = 3+[\kappa_3]$
$32^{3/2}$	$c_{30} \frac{1}{1-\gamma_3} (x^3 - \gamma_3 x^5) + c_{31} x^3 (1 - \beta_3 \log x)$	$\frac{(c_{30} + c_{31}) e^{-\kappa_3 (x-1)}}{\langle \kappa_3 \rangle \left( 1 + \frac{3}{\kappa_3 x} + \frac{3}{(\kappa_3 x)^2} \right)}$	$\gamma_3 = \frac{3+[\kappa_3]}{5+[\kappa_3]}$

$a_1, b_{10}, b_{11}, a_3, b_3, c_{30}, c_{31}$  sind die zu bestimmenden Parameter. Trotz der Einfachheit der Ansätze führt also das Variationsverfahren hier zu einem System von 7 linearen Gleichungen. Dazu treten zwei zusätzliche Gleichungen zur Bestimmung von  $U$  und  $V$ , nämlich die Normierungsbedingung (11) und die Gleichung (12), beide bilinear in den obenerwähnten Parametern. Es dürfte infolgedessen kaum möglich sein, deren Zahl wesentlich zu erhöhen, ohne ein allzu unhandliches Gleichungssystem zu erhalten. Der hier gewählte Ansatz (der das Ergebnis vieler Versuche darstellt) dürfte der kürzeste sein, der noch vertrauenswürdige Resultate ergibt. Einige Besonderheiten erfordern jedoch noch eine Rechtfertigung: Es erweist sich als nicht notwendig, für die Hauptkomponente ( $10^{1/2}$ ) einen feineren Ansatz zu wählen. Schlecht angepasste Funktionen  $u_s^{(n)}$  machen nämlich ihren Einfluss haupt-

sächlich dadurch geltend, dass die kinetische Energie des Bereiches  $r < r_0$ :

$$\overline{(E_{\text{kin}})_s} = -\frac{\hbar^2}{M} \left( \int_0^{r_0} dr F_s^2(r) \right)^{-1} \cdot \int_0^{r_0} dr F_s(r) \left( \frac{d^2}{dr^2} - \frac{L(L+1)}{r^2} \right) F_s(r) \quad (13)$$

einen unrichtigen Wert erhält. Eine Untersuchung bestätigt dabei aber die ohnehin plausible Tatsache, dass für  $S$ -Zustände der Wert von  $\overline{(E_{\text{kin}})_s}$  weit weniger rasch verfälscht wird als etwa für  $D$ -Zustände. Es erschien deshalb geboten, vor allem die den hier massgebenden  $D$ -Zuständen ( $12^{1/2}$  und  $32^{3/2}$ ) zugehörenden  $F$ -Komponenten sorgfältig zu berücksichtigen.

### Numerische Ergebnisse:

Unter Zugrundelegung der in Tabelle 2 zusammengestellten Ansätze erhält man mit  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm und  $Q = 2,73 \cdot 10^{-27}$  cm<sup>2</sup> s)

a) für  $\varepsilon = 30$  MeV:

$F_{10^{1/2}} = 1,499 \cdot (x - 0,450 \cdot x^3)$	Beimischung*)
$F_{10^{3/2}} = -0,1443 \cdot (x - 0,5625 \cdot x^5)$	0,467 %
$F_{12^{1/2}} = -0,0798 \cdot (x^3 - 3,636 \cdot x^5 + 20,78 \cdot x^3 \cdot \log x)$	3,87 %
$F_{12^{3/2}} = -0,0296 \cdot (x^3 - 7,710 \cdot x^3 \cdot \log x)$	0,08 %
$F_{32^{3/2}} = -0,395 \cdot (x^3 - 1,258 \cdot x^5 + 4,52 \cdot x^3 \cdot \log x)$	1,38 %

und als Potentialkonstanten im Innenraum  $x < 1$ :

$$U = 113,0 \text{ MeV}, \quad V = 11,55 \text{ MeV}.$$

b) für  $\varepsilon = 60$  MeV:

$F_{10^{1/2}} = 1,508 \cdot (x - 0,450 \cdot x^3)$	
$F_{10^{3/2}} = -0,1200 \cdot (x - 0,6304 \cdot x^5)$	0,288 %
$F_{12^{1/2}} = -0,0802 \cdot (x^3 - 3,600 \cdot x^5 + 20,58 \cdot x^3 \cdot \log x)$	3,83 %
$F_{12^{3/2}} = -0,0203 \cdot (x^3 - 9,255 \cdot x^3 \cdot \log x)$	0,045 %
$F_{32^{3/2}} = -0,2856 \cdot (x^3 - 1,225 \cdot x^5 + 4,355 \cdot x^3 \log x)$	0,635 %

$$U = 106,1 \text{ MeV}, \quad V = 20,9 \text{ MeV}.$$

Wir müssen nun die Frage diskutieren, ob die Beschränkung des ursprünglichen Problems auf das hier betrachtete zulässig sei. Als hinreichende Bedingung können wir formulieren: Die nicht

\*) Unter „Beimischung“ verstehen wir den Betrag des Normierungsintegrals

$$N_s = \int_0^\infty dx F_s^2(x),$$

wenn  $\sum_s N_s = 1$  ist.

berücksichtigten Komponenten müssen schwach genug sein, dass sie, mit den oben erhaltenen Werten von  $U$  und  $V$ , die Bindungsenergie nicht mehr wesentlich beeinflussen können. Zur Untersuchung dieser Frage leiten wir eine grobe Näherungsformel zur Abschätzung von  $\bar{E}$  ab: Durch Multiplikation der Schrödingergleichung (5) mit  $F_s(r)$  und Integration von 0 bis  $r_0$  wird, unter Berücksichtigung der Konstanz von  $U$  und  $V$  und mit den Bezeichnungen

$$\int_0^{r_0} dr F_s^2(r) = N_s^i, \quad \int_0^{r_0} dr F_s(r) F_{s'}(r) = N_{ss'}^i$$

und

$$\int_0^{r_0} dr F_s(r) H_s F_s(r) = \bar{H}_s N_s^i$$

(d. h.  $\bar{H}_s$  ergibt sich aus  $H_s$  durch die Substitution  $E_{\text{kin}} \rightarrow \bar{E}_{\text{kin}}$ , vgl. (13)) die Gleichung

$$(\bar{H}_s - E) N_s^i + \sum_{s'}' H_{ss'} N_{ss'}^i = 0. \quad (14)$$

Es sei  $\sigma$  die Hauptkomponente; mit  $s$  seien die an  $\sigma$  gekoppelten und mit  $t$  nicht an  $\sigma$  gekoppelte Nebenkomponten bezeichnet (d. h.  $t$  entspricht mindestens  $L = 4$  oder  $j = 5/2$ ; dies zufolge der bereits erwähnten Auswahlregeln  $j - j' = 0, \pm 1$  und  $L - L' = 0, \pm 2$  für die Matricelemente von  $\Omega$  und  $T'$ ). Wir können dann für (14) näherungsweise folgendes System setzen:

$$(\bar{H}_\sigma - E) N_\sigma^i + \sum_s' H_{s\sigma} N_{s\sigma}^i = 0, \quad (15a)$$

$$\bar{H}_s N_s^i + \sum_{s'}' H_{ss'} N_{ss'}^i + \sum_t H_{st} N_{st}^i + H_{s\sigma} N_{s\sigma}^i \cong 0, \quad (15b)$$

$$\bar{H}_t N_t^i + \sum_s H_{st} N_{st}^i \cong 0. \quad (15c)$$

In (15b) und (15c) wurde  $E$  gegen  $\bar{H}_s$  vernachlässigt (vgl. die nachstehend angegebenen Zahlwerte von  $\bar{H}_s$ ), in (15c) dazu die Kopplungen der  $t$ -Komponenten unter sich. Da wir an dieser Stelle nur eine Abschätzung der Grössenordnung des Einflusses der einzelnen Komponenten anstreben, dürfen wir annehmen, dass

$$N_s^i N_{s'}^i \cong (N_{ss'}^i)^2 \quad (16)$$

ist. (Diese Gleichung würde exakt gelten, falls im Innenraum  $0 < r < r_0$   $F_s(r)$  und  $F_{s'}(r)$  zueinander proportional wären.) Damit

gelingt es nämlich, die  $N^i$  aus (15a, b, c) zu eliminieren, und es wird

$$E \cong \bar{H}_\sigma - \sum_s \frac{H_{s\sigma}^2}{\bar{H}_s} \left( 1 + \sum_t \frac{H_{st}^2}{\bar{H}_s \bar{H}_t} + \dots \right) - 2 \sum_{s < s'} \frac{H_{ss'} H_{s'\sigma}}{\bar{H}_s \cdot \bar{H}_{s'}} \cdot H_{ss'} + \dots \quad (17)$$

in erster Näherung also

$$E \cong \bar{H}_\sigma - \sum_s \frac{H_{s\sigma}^2}{\bar{H}_s} = \bar{H}_\sigma - \sum_s \Delta E_s. \quad (17a)$$

Für die von uns oben vernachlässigten Komponenten ist immer  $j^5 \geq 5/2$  oder  $L \geq 4$ ; sie sind infolgedessen nicht an die Hauptkomponente gekoppelt. Eine solche Komponente ( $t$ ) ruft aber nach (17) eine Depression von  $E$  um

$$\Delta E_t = \sum_s \Delta E_{st} \cong \sum_s \frac{H_{s\sigma}^2}{\bar{H}_s} \cdot \frac{H_{st}^2}{\bar{H}_s \cdot \bar{H}_t}$$

hervor. Ihre Vernachlässigung ist demnach gerechtfertigt, sobald für jedes mit  $t$  gekoppelte  $s$  gilt

$$\left| \frac{\Delta E_{st}}{\Delta E_s} \right| \ll 1, \quad \text{d. h.} \quad \frac{H_{st}^2}{\bar{H}_s \bar{H}_t} \ll 1. \quad (18)$$

Wir verifizieren die Erfüllung dieser Bedingung am Beispiel der Komponente  $t = 32^{5/2}$ . Hier sind folgende zweistufigen Ankoppelungen an  $\sigma$  vorhanden

- 1)  $32^{5/2} \rightarrow 10^3/2 \rightarrow 10^1/2$ , mit  $H_{st} = U \cdot (32^{5/2} | T' | 10^3/2) = U \cdot \frac{1}{25} \sqrt{42}$
- 2)  $32^{5/2} \rightarrow 12^3/2 \rightarrow 10^1/2$ , mit  $H_{st} = U \cdot (32^{5/2} | T' | 12^3/2) = U \cdot \frac{2}{25} \sqrt{3 \cdot 7}$
- 3)  $32^{5/2} \rightarrow 32^3/2 \rightarrow 10^1/2$ , mit  $H_{st} = U \cdot (32^{5/2} | T' | 32^3/2) +$   
 $V \cdot (3^5/2 | \Omega | 3^3/2) = U \cdot \frac{-8}{175} \sqrt{2 \cdot 3} + V \cdot \frac{1}{5} \sqrt{6}.$

1) ergibt den grössten Beitrag zu  $\Delta E_t$ ; für den Fall  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm und  $\varepsilon = 30$  MeV,  $U = 113$  MeV,  $V = 11,5$  MeV wird

$$\bar{H}_s = 139, \quad \bar{H}_t = 408, \quad H_{st} = 29,2 \text{ MeV} \quad \text{und} \quad H_{st}^2 / \bar{H}_s \cdot \bar{H}_t = 1/67.$$

Analoge, zum Teil noch wesentlich günstigere Ergebnisse erhält man für  $t = 10^5/2$  und  $t = 12^5/2$ . Damit dürfte also die vorgenommene Reduktion des ursprünglichen Problems gerechtfertigt sein. Wir können noch zeigen, dass die Berücksichtigung der Kopp-



lungen der NebenkompONENTEN  $s$  untereinander sinnvoll ist. Diese Kopplungen geben in (17) Anlass zu den Gliedern

$$\Delta E_{ss'} = 2 \frac{H_{s\sigma} H_{s'\sigma}}{\bar{H}_s \cdot \bar{H}_{s'}} \cdot H_{ss'};$$

deren Vernachlässigung wäre erlaubt im Falle dass

$$|\Delta E_{ss'}| \ll \sqrt{|\Delta E_s| \cdot |\Delta E_{s'}|} \quad \text{d. h.} \quad 2 \left| \frac{H_{ss'}}{\sqrt{\bar{H}_s \bar{H}_{s'}}} \right| \ll 1. \quad (19)$$

Die Bedingung (19) ist nun aber, wenigstens für den kleinsten hier verwendeten Wert von  $\varepsilon$  (30 MeV), nicht erfüllt. Betrachten wir z. B. den Fall  $s = 10^{3/2}$ ,  $s' = 12^{3/2}$ :  $H_{ss'} = -34 \sqrt{2} \cdot /225 \cdot U$ . Mit den gleichen Potentialkonstanten wie oben wird

$$\bar{H}_s = 139, \bar{H}_{s'} = 245, H_{ss'} = -24,2 \text{ MeV und damit } 2 \left| \frac{H_{ss'}}{\sqrt{\bar{H}_s \bar{H}_{s'}}} \right| = \frac{1}{3,8}.$$

Es bleibt nun zu untersuchen, ob das Variationsverfahren hinreichend genaue Lösungen des reduzierten Problems ergibt. Dazu bestimmen wir mit Hilfe der oben erhaltenen Lösungen:  $V = V^0$ ,  $U = U^0$  und  $\mathfrak{F} = \mathfrak{F}^0$  die „Fehlerfunktionen“  $G_s(r)$  (vgl. Abschnitt II):

$$G_s(r) = (\tilde{H}_s - E) F_s^0 + \sum_{s'}' \tilde{H}_{ss'} F_{s'}^0, \quad \text{mit } \tilde{H} = H(U^0, V^0). \quad (20)$$

$G_s(r)$  verschwindet im Aussenraum ( $r > r_0$ ) und ist nach dem in II gesagten orthogonal zu  $F_s^0(r)$ :

$$\int_0^{r_0} dr F_s^0(r) G_s(r) = 0. \quad (21)$$

Zum Operator  $\tilde{H}$  (20) gehöre  $\tilde{\mathfrak{F}}$  als exakte Eigenfunktion und  $\tilde{E}$  als Eigenwert.  $\tilde{\mathfrak{F}}$  gibt Anlass zu einem Quadrupolmoment  $\tilde{Q}$ . Um die „Störungen“  $\tilde{E} - E$  und  $\tilde{Q} - Q$  der Energie und des Quadrupolmomentes wieder rückgängig zu machen, genügt es, in einer ersten Näherung  $U^0$  und  $V^0$  durch

$$U = U^0 - \left( \frac{\partial U^0}{\partial E} \right) (\tilde{E} - E) - \left( \frac{\partial U^0}{\partial Q} \right) (\tilde{Q} - Q) \quad (22a)$$

und

$$V = V^0 - \left( \frac{\partial V^0}{\partial E} \right) (\tilde{E} - E) - \left( \frac{\partial V^0}{\partial Q} \right) (\tilde{Q} - Q) \quad (22b)$$

zu ersetzen, wobei die Ableitungen von  $U^0$  und  $V^0$  nach  $E$  und  $Q$  durch entsprechende Differenzenquotienten approximiert werden dürfen, z. B. also  $\frac{\partial U^0}{\partial Q}$  durch  $\frac{U^0(E, Q) - U^0(E, Q_1)}{Q - Q_1}$ , usw.  $U^0(E, Q_1)$

und  $V^0(E, Q_1)$  erhält man hierbei als Lösungen des Gleichungssystems (10), (11), (12) mit dem speziellen Wert  $Q_1$  des Parameters  $Q$ .

Es handelt sich nun darum,  $\tilde{E}-E$  und  $\tilde{Q}-Q$  zu bestimmen. Dazu zerlegen wir, im Sinne eines Störungsverfahrens, den Operator  $\tilde{H}_s$ :

$$\begin{aligned}\tilde{H}_s &= (E_{\text{kin}} + E_{\text{pot}} + E_{\text{isob}})_s = H_s^0 + H_s^1; \\ H_s^0 &= (E_{\text{kin}} + E_{\text{pot}}^0 + E_{\text{isob}})_s; \quad H_s^1 = (E_{\text{pot}} - E_{\text{pot}}^0),\end{aligned}$$

und zwar derart, dass

$$(\tilde{H}_s^0 - E) \cdot F_s^0 = 0 \text{ und folglich auch } H_s^1 \cdot F_s^0 = G_s - \sum_{s'}' \tilde{H}_{ss'} \cdot F_{s'}^0 \quad (23)$$

ist. Die Schrödingergleichung  $(\tilde{H} - \tilde{E}) \tilde{\mathfrak{F}} = 0$  oder

$$(H_s^0 + H_s^1 - E - \Delta_1 E - \Delta_2 E - \dots) \cdot (F_s^0 + F_s^1 + \dots) + \sum_{s'}' \tilde{H}_{ss'} (F_{s'}^0 + F_{s'}^1 + \dots) = 0$$

erfüllen wir dann wie üblich in der folgenden Weise:

$$(H_s^0 - E) F_s^0 = 0, \quad (24a)$$

$$(H_s^0 - E) F_s^1 = -(H_s^1 - \Delta_1 E) F_s^0 - \sum_{s'}' \tilde{H}_{ss'} F_{s'}^0 = \Delta_1 E F_s^0 - G_s, \quad (24b)$$

$$(H_s^0 - E) F_s^2 = -(H_s^1 - \Delta_1 E) F_s^1 + \Delta_2 E F_s^0 - \sum_{s'}' \tilde{H}_{ss'} F_{s'}^1. \quad (24c)$$

Aus (24b) folgt durch Multiplikation mit  $F_s^0$  und Integration und mit Hilfe von (24a)

$$\Delta_1 E \int_0^\infty dr (F_s^0)^2 = \int_0^\infty dr F_s^0 G_s,$$

d. h. nach (21):  $\Delta_1 E = 0$ . Ebenso folgt aus (24c) mit (23)

$$\Delta_2 E \int_0^\infty dr (F_s^0)^2 = \int_0^{r_0} dr F_s^1 G_s + \sum_{s'}' \tilde{H}_{ss'} \int_0^{r_0} dr (F_s^0 F_{s'}^1 - F_s^1 F_{s'}^0) \quad (25)$$

und hieraus durch Summation nach  $s$

$$\Delta_2 E = \sum_s \int_0^{r_0} dr F_s^1 G_s. \quad (25')$$

Nach (24b) ist  $F_s^1$  eine Lösung der inhomogenen Gleichung

$$(H_s^0 - E) F_s^1 = -G_s. \quad (26)$$

Nennen wir  $\Phi_s^0$  eine von  $F_s^0$  linear unabhängige Lösung der Gleichung (24a), so gilt offenbar

$$\frac{d}{dr} \left( \frac{dF_s^0}{dr} \Phi_s^0 - \frac{d\Phi_s^0}{dr} F_s^0 \right) = 0$$

und man kann  $\Phi_s^0$  so normieren, dass

$$\frac{dF_s^0}{dr} \Phi_s^0 - \frac{d\Phi_s^0}{dr} F_s^0 = 1 \quad (27)$$

ist. Dann lautet die den erforderlichen Randbedingungen genügende Lösung von (26)

$$F_s^1 = \lambda_s F_s^0 + f_s^1, \quad \text{mit} \quad f_s^1 = F_s^0 \int_{r_0}^r d\varrho \Phi_s^0 G_s - \Phi_s^0 \int_{r_0}^r d\varrho F_s^0 G_s.$$

(Als untere Integrationsgrenze kann  $r_0$  gesetzt werden, da ja  $G_s$  und damit  $f_s^1$  im Aussenraum identisch verschwindet.)

Zur Festlegung der  $\lambda_s$  dienen die Normierungsbedingung

$$\sum_s \int_0^\infty dr F_s^0 F_s^1 = \sum_s (\lambda_s N_s + n_s) = 0; \quad n_s = \int_0^{r_0} dr F_s^0 f_s^1, \quad (28)$$

und die Gleichungen, die sich durch Elimination von  $\Delta_2 E$  aus (25) ergeben:

$$\Delta_2 E = \frac{1}{N_s} \left\{ \varepsilon_s + \sum_{s'} (h_{ss'} + (\lambda_{s'} - \lambda_s) \eta_{ss'}) \right\} = \text{unabhängig von } s, \quad (29)$$

wobei

$$\varepsilon_s = \int_0^{r_0} dr f_s^1 G_s; \quad h_{ss'} = -h_{s's} = \tilde{H}_{ss'} \int_0^{r_0} dr (F_s^0 f_{s'}^1 - F_{s'}^0 f_s^1)$$

bedeuten.

$$\eta_{ss'} = +\eta_{s's} = \tilde{H}_{ss'} N_{ss'}$$

Für eine Abschätzung der Grössenordnung der Korrekturen genügt es offenbar, das System (28), (29) zu reduzieren auf die Berücksichtigung der Hauptkomponente  $10\frac{1}{2}$  ( $\equiv 0$ ) und der grössten Nebenkompente  $12\frac{1}{2}$  ( $\equiv 2$ ). Es folgt dann

$$\lambda_0 = -(n_0 + n_2) + \frac{N_2}{\eta_{02}} (\varepsilon_0 N_2 - \varepsilon_2 N_0 + h_{02}) \quad (30)$$

und  $\lambda_2$  durch Vertauschen der Indices 0, 2.

### Numerische Ergebnisse:

Vorerst sei bemerkt, dass  $\Phi_0^0$  erhalten wurde durch Integration von (27); mit  $F_0 = a \cdot (x - \alpha x^3)$  wird

$$\Phi_0^0 = \frac{1}{a} (1 - 3\alpha x^2 + \alpha^2 x^4 + \dots);$$

$\Phi_2^0$  hingegen wurde, mit Hilfe von (27), graphisch bestimmt, da eine gute Approximation der Reihe durch wenig Glieder hier nicht möglich ist. Wir geben im folgenden die Ergebnisse des Verfahrens für den Fall  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm,  $\varepsilon = 30$  MeV an:

Die Fehlerfunktionen  $G_s$  werden ( $x < 1$ ):

$$G_0 = \frac{\hbar^2}{Mr_0^2} (-3,346 \cdot x - 3,969 \cdot x^3 + 5,910 \cdot x^5 - 26,08 \cdot x^3 \cdot \log x)$$

$$G_2 = \frac{\hbar^2}{Mr_0^2} (+1,82 \cdot x + 0,64 \cdot x^3 - 2,219 \cdot x^4 + 10,09 \cdot x^3 \cdot \log x)$$

Es folgt damit

$$\varepsilon_0 = -1,40 \cdot 10^{-2} \text{ MeV}, \quad \varepsilon_2 = -0,612 \cdot 10^{-3} \text{ MeV},$$

d. h.

$$\Delta_2 E \cong \tilde{E} - E = -1,46 \cdot 10^{-2} \text{ MeV} \text{ und } \Delta_2 E/E = 0,67\%.$$

Die zur Bestimmung von  $\lambda_0$  und  $\lambda_2$  notwendigen Koeffizienten werden:

$$n_0 = +0,790 \cdot 10^{-2} \quad h_{02} = +0,49 \cdot 10^{-2} \quad N_2 = 3,87 \cdot 10^{-2}$$

$$n_2 = +0,253 \cdot 10^{-3} \quad \eta_{02} = -0,663 \quad N_0 = 0,942.$$

Es folgt  $\lambda_0 = -0,884 \cdot 10^{-2}$ ,  $\lambda_2 = -0,109 \cdot 10^{-2}$ .

Damit kann nun  $\delta Q = \tilde{Q} - Q$  abgeschätzt werden. Unter Berücksichtigung des Umstandes, dass der Aussenraum ( $r > r_0$ ), wo  $f_s^1 = 0$  ist, den grössten Beitrag zu  $Q$  liefert, und dass die Maximalamplituden von  $f_0^1$  und  $f_2^1$  nicht wesentlich grösser sind als  $|\lambda_0|$  und  $|\lambda_2|$  (es ist  $\text{Max } |f_0^1| = 2,4 \cdot 10^{-2}$  bei  $x = 0,6$  und  $\text{Max } |f_2^1| = 0,65 \cdot 10^{-2}$  bei  $x = 0,5$ ), wird mit guter Annäherung

$$\delta Q \cong (\lambda_0 + \lambda_2) \cdot \sqrt{2}/10 \int_0^\infty dr r^2 (F_0^0 \cdot F_2^0) \cong (\lambda_0 + \lambda_2) \cdot Q$$

$$\text{d. h. } \delta Q/Q \cong (\lambda_0 + \lambda_2) \cong -1 \cdot 10^{-2}.$$

Zur Bestimmung von  $U - U^0$  und  $V - V^0$  nach (22a, b) benötigen wir noch die dort eingehenden partiellen Ableitungen. Mit Hilfe der weiter unten angegebenen Werte von  $U^0$  und  $V^0$  zu  $Q_1 = 0,8 \cdot 2,73 \cdot 10^{-27} \text{ cm}^2$  ergibt sich

$$Q \left( \frac{\partial U^0}{\partial Q} \right) \cong 210 \text{ MeV}, \quad Q \left( \frac{\partial V^0}{\partial Q} \right) \cong -92,5 \text{ MeV}.$$

Demgegenüber erweisen sich die Werte von  $E \cdot (\partial U^0 / \partial E)$  und

\*



$E \cdot (\partial V^0 / \partial E)$  als bedeutend kleiner\*), so dass es genügt, in (22a, b) die Glieder  $\sim (\tilde{Q} - Q)$  zu betrachten. Infolgedessen wird

$$\begin{aligned} U - U^0 &\cong -210 \cdot 10^{-2} \text{ MeV} = -2,1 \text{ MeV}, \\ V - V^0 &\cong +92,5 \cdot 10^{-2} \text{ MeV} = +0,92 \text{ MeV}. \end{aligned}$$

Diese Korrekturen sind aber für die Beurteilung der Theorie belanglos.

Abschliessend seien noch einige Angaben gemacht bezüglich des Verhaltens der Potentiale  $U$  und  $V$  bei einer Änderung der Reichweite  $r_0$  und einer kleinen Änderung im Wert des Quadrupolmomentes  $Q$ . Eine Vergrößerung von  $r_0$  zieht eine Vergrößerung des mittleren Abstandes der zwei Nukleonen nach sich. Infolgedessen wird das zur Hervorbringung von  $Q$  notwendige Potential  $U$  kleiner werden und damit  $V$  anwachsen. Den gleichen Effekt bringt, bei gleichbleibendem  $r_0$ , eine Verkleinerung des Wertes von  $Q$  hervor. Wir geben nachstehend zwei Beispiele:

a) Eine Abänderung von  $r_0$ :  $r_0 = 3,2 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$ ,  $\varepsilon = 30 \text{ MeV}$ . Es wird

$$U = 52,6 \text{ MeV}, \quad V = 27,4 \text{ MeV};$$

die Beimischungen werden

$$10^{3/2}: 1,16\%, \quad 12^{1/2}: 2,47\%, \quad 12^{3/2}: 0,07\%, \quad 32^{3/2}: 0,57\%.$$

Mit abnehmendem  $r_0$  nimmt auch  $V$  ab, um schliesslich negativ zu werden. Dieser Fall wäre an sich interpretierbar im Rahmen einer pseudovektoriellen Mesontheorie (vgl. <sup>9)</sup>); sie muss aber hier ausgeschlossen werden, da nach COESTER<sup>10)</sup> positives  $V$  notwendig ist, um die Stabilität der schweren Kerne zu garantieren. Die Forderung  $V > 0$  beschränkt aber die zulässigen  $r_0$ -Werte nach unten und zwar um so stärker, je kleiner die Anregungsenergie der Isobaren ist; es gehören

$$\begin{aligned} \text{zu } \varepsilon = 30 \text{ MeV: } (r_0)_{\text{Min}} &= 2,6 \cdot 10^{-13} \text{ cm}, \\ \varepsilon = 60 \text{ MeV: } (r_0)_{\text{Min}} &= 2,5 \cdot 10^{-13} \text{ cm}, \\ \varepsilon = \infty &: (r_0)_{\text{Min}} = 2,3 \cdot 10^{-13} \text{ cm}. \end{aligned}$$

Diese Feststellungen sind wichtig im Hinblick auf die nachfolgende Behandlung des Singlett- $S$ -Zustandes. Um dessen Bindungsenergie in Übereinstimmung mit der Erfahrung zu bringen, stehen noch die zwei Parameter  $r_0$  und  $\varepsilon$  zur Verfügung, die aber beide in ihrer Bewegungsfreiheit ziemlich eingeschränkt sind.

\*)  $(\partial U^0 / \partial E)$  und  $(\partial V^0 / \partial E)$  wurden abgeschätzt unter Verwendung von Ergebnissen der Rechnungen von Herrn A. KIND (unveröffentlicht). Es ergab sich  $E \cdot (\partial V^0 / \partial E) \cong 30 \text{ MeV}$  und  $|\partial U^0 / \partial E| \lesssim |\partial V^0 / \partial E|$ .

(Dies gilt bezüglich  $\varepsilon$  natürlich nur, falls man sich an die Bedingung starker Kopplung hält.)

b) Eine Abänderung von  $Q$ . Unter Zugrundelegung der Daten:  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm,  $\varepsilon = 30$  MeV und  $Q = 0,8 \cdot 2,73 \cdot 10^{-27}$  cm<sup>2</sup> erhält man

$$U = 70,7 \text{ MeV}, \quad V = 30,6 \text{ MeV}$$

und die Beimischungen

$$10^{3/2}: 1,24\%, \quad 12^{1/2}: 2,27\%, \quad 12^{3/2}: 0,09\%, \quad 32^{3/2}: 0,71\%.$$

#### IV. Der Singlett- $S$ -Zustand.

Dieser Zustand ist charakterisiert durch die Quantenzahlen  $K = 1$ ,  $I = 0$ ,  $L$  und  $J$  gerade. Wegen  $K = 1$  ist für  $J > 0$ :  $j_1 - j_2 = 0, \pm 1$ ; der tiefste angeregte Zustand gehört infolgedessen zu  $j_1 = 1/2$ ,  $j_2 = 3/2$  (resp. umgekehrt); seine Anregungsenergie ist  $3/2 \varepsilon$ , d. h. die Hälfte der Anregungsenergie der Isobaren im Deuteron-Grundzustand. Zur Hauptkomponente  $JL j_1 j_2 = 00^{1/2} 1/2$  gesellen sich die Beimischungen:

$$00^{3/2}, 00^{5/2}, \dots (^1S), (j_1 = j_2 \text{ wegen } J = 0; \text{ vgl. (1)})$$

$$22^{1/2} 3/2, 22^{3/2} 1/2, 22^{3/2}, \dots (^5D), \dots$$

Wegen  $I = 0$  treten nach (2) nur Komponenten mit  $J = L$  auf. Wir geben im folgenden eine Tabelle der interessierenden Matrixelemente von  $\Omega$  und  $T'$  (Tabelle 3). Durch das Indextripel 22 s

Tabelle 3.

$J j$	$J j'$	$(J j   \Omega   J j')$	$JL j$	$J' L' j'$	$(JL j   T'   J' L' j')$
$0^{1/2}$	$0^{1/2}$	$-\frac{1}{3}$	$00 j$	$00 j'$	0
$0^{1/2}$	$0^{3/2}$	$\frac{1}{3} \sqrt{5}$	$00^{1/2}$	$22 s$	$\frac{4}{9}$
$0^{3/2}$	$0^{3/2}$	$\frac{11}{15}$		$22^{3/2}$	$-\frac{1}{9} \sqrt{5}$
$2 s$	$2 s$	$-\frac{1}{6}$	$00^{3/2}$	$22 s$	$-\frac{2}{9} \sqrt{1/5}$
$2 s$	$2^{3/2}$	$\frac{4}{3} \sqrt{1/5}$		$22^{3/2}$	$\frac{44}{225}$
$2^{3/2}$	$2^{3/2}$	$\frac{11}{75}$	$22 s$	$22 s$	$\frac{5}{18}$
				$22^{3/2}$	$-\frac{2}{9} \sqrt{1/5}$
			$22^{3/2}$	$22^{3/2}$	$\frac{44}{225}$

ist daselbst der aus  $22\frac{1}{2}\frac{3}{2}$  und  $22\frac{3}{2}\frac{1}{2}$  gebildete, in  $j_1 j_2$  symmetrische Zustand angedeutet.

Wir werden nun so vorgehen, dass wir für bestimmte Werte von  $r_0$  und  $\varepsilon$  und unter Benützung der für diese Werte in III erhaltenen Potentialkonstanten  $U$  und  $V$  eine Eigenwertbestimmung durchführen. Das Verfahren ist dabei grundsätzlich dasselbe wie in III, doch müssen folgende Bemerkungen noch gemacht werden:

a) Die Hauptkomponente  $\sigma = 00\frac{1}{2}$  hat im Aussenraum  $x > 1$  im Falle eines negativen Eigenwertes  $E$  den Verlauf

$$F_\sigma(x) = e^{-\kappa_1(x-1)}, \quad \text{mit} \quad \kappa_1^2 = \frac{Mr_0^2}{\hbar^2} |E|.$$

Für den Innenraum setzen wir infolgedessen an

$$F_\sigma(x) = \frac{1}{2} \{ (3 + \kappa_1) \cdot x - (1 + \kappa_1) \cdot x^3 \}, \quad (31)$$

womit alle erforderlichen Stetigkeitsbedingungen erfüllt sind.

b) In den Ausdrücken für die den angeregten Zuständen entsprechenden  $F$ -Komponenten treten im Aussenraum die Konstanten

$$\kappa_s = \sqrt{\frac{Mr_0^2}{\hbar^2} \left( \frac{3}{2} \varepsilon - E \right)} \quad \text{und} \quad \kappa_3 = \sqrt{\frac{Mr_0^2}{\hbar^2} (3\varepsilon - E)}$$

auf. Hier vernachlässigen wir  $E$  gegen  $\frac{3}{2}\varepsilon$  und  $3\varepsilon$ ; dadurch wird der Gang der Rechnung sehr vereinfacht.

Das System der Gleichungen (10) gestattet dann die Bestimmung der relativen Amplituden  $a_x^{(i)}$  ( $a_\sigma = 1$ ) und des Eigenwertparameters  $\kappa_1$ . Wir geben einige Resultate: Mit

$$\text{a) } r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13} \text{ cm, } \varepsilon = 30 \text{ MeV, } U = 113 \text{ MeV, } V = 11,55 \text{ MeV}$$

$$\text{b) } r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13} \text{ cm, } \varepsilon = 60 \text{ MeV, } U = 106 \text{ MeV, } V = 20,9 \text{ MeV}$$

$$\text{c) } r_0 = 2,6 \cdot 10^{-13} \text{ cm, } \varepsilon = 180 \text{ MeV, } U = 150 \text{ MeV, } V = 18,2 \text{ MeV}$$

wird

$$\text{a) } E = -1,58 \text{ MeV}$$

$$\text{b) } E = -1,17 \text{ MeV}$$

$$\text{c) } E = -0,28 \text{ MeV.}$$

In allen drei Fällen würde es also, im Widerspruch mit der Erfahrung, einen stabilen  $^1S$ -Zustand geben. Bei genügend kleinen Werten von  $\varepsilon$  ( $< 30$  MeV bei  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm) kann der  $^1S$ -Zustand sogar stabiler werden als der Grundzustand. Dieses überraschende Resultat ist dem Umstand zuzuschreiben, dass in dem

hier benützten Modell im Gegensatz zu den älteren Theorien ohne Isobaren (schwache Kopplung) die Tensorkraft für diesen Zustand des Systemes nicht identisch verschwindet. Für nicht zu grosse Isobarananregungsenergien hat dann die starke Ankopplung der Komponente  $22s$  ( ${}^5D$ ) an die Hauptkomponente eine wesentliche Vergrößerung der Bindungsenergie zur Folge. Um die Energie des  ${}^1S$ -Zustandes Null oder positiv zu machen, wie es die Erfah-

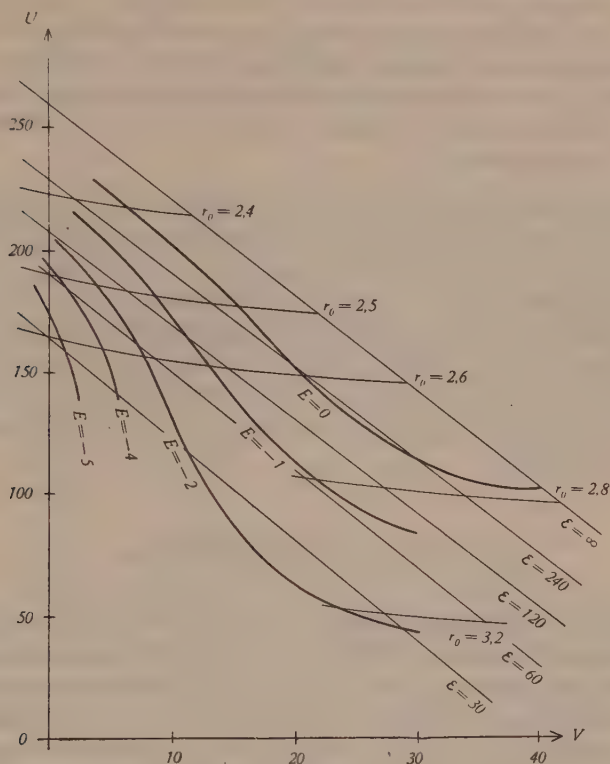


Fig. 1.

Die Bindungsenergie des Singlett- $S$ -Zustandes. Alle Energien in MeV;  $r_0$  in  $10^{-13}$  cm.

rung verlangt, muss man demnach die Anregungsenergie der Isobaren sehr gross wählen, d. h. grösser als die übrigen, in den Diagonalelementen  $\langle s | H | s \rangle$  stehenden Energien. Um ein Beispiel zu geben: für obige Werte von  $r_0$  ist  $(\bar{E}_{\text{Kin}})_{22s} \sim 100$  MeV; daraus ergibt sich sofort, dass man zu einer richtigen Darstellung der Bindungsenergie zu Werten von  $\epsilon > 100$  MeV greifen muss. Wie ungünstig die Sachlage ist, kann aus der beiliegenden graphischen Darstellung (Fig. 1) ersehen werden. Ausgehend von den oben



berechneten Werten sind dort weitere, mit Hilfe von Formel (17a) bestimmte Werte von  $E = E(\varepsilon, r_0)$  in Funktion dieser zwei Parameter aufgetragen. Die Darstellung ist folgendermassen zu lesen: Das Netz der Kurven  $\varepsilon = \text{const.}$  und  $r_0 = \text{const.}$  ist so auf die  $U, V$ -Ebene aufgelegt, dass die Wertegruppe  $U, V, r_0, \varepsilon$  richtige Bindungsenergie und richtiges Quadrupolmoment für den Deuteron-Grundzustand ergibt. (Der Grenzfall  $\varepsilon = \infty$  entspricht dem bei RARITA und SCHWINGER<sup>11)</sup> behandelten Problem.) Die zugehörigen  $^1S$ -Energien können aus den Kurven  $E = \text{const.}$  qualitativ abgelesen werden. Aus dem Verlauf der Kurve  $E = 0$  ersieht man, dass die kleinsten  $\varepsilon$ -Werte in der Gegend von  $r_0 = 2,6 \cdot 10^{-13}$  cm zu erhalten sind, und auch dort sind noch rund 200 MeV erforderlich\*).

Abschliessend sei noch bemerkt, dass die zu den vorliegenden Rechnungen verwendete Methode unbrauchbar wird, sobald man zu  $\varepsilon$ -Werten  $<$  etwa 10 MeV übergeht. In diesem Falle werden nämlich grössere Werte von  $j_1, j_2$  massgebend, und es existieren dann diesem Falle besser angepasste Näherungsmethoden (Adiabatenvorgang, vgl. <sup>3)</sup>). Nach Fig. 1 ist es aber sehr unwahrscheinlich, dass so kleine Werte von  $\varepsilon$  mit der Erfahrung verträglich sein könnten. Es wurde daher auf diese Seite des Problems nicht näher eingetreten.

## V. Die Proton-Neutron-Streuung.

Wie in der Einleitung bemerkt wurde, war die Annahme der Existenz von Isobaren mit nicht allzuhoher Anregungsenergie vor allem von Interesse im Hinblick auf die Anisotropie der Proton-Neutron-Streuung. Um die  $P$ -Potentiale in wirksamer Weise herabzudrücken (insbesondere den in der symmetrischen Theorie tiefstliegenden  $^3P_0$ -Term), wären aber Werte von  $\varepsilon < 30$  MeV erforderlich (dies für  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm, vgl. <sup>3)</sup>). Die in IV erhaltenen Ergebnisse bedeuten also, dass es nicht möglich ist, den das Vorzeichen und den Betrag der Anisotropie betreffenden Einwand gegen die ladungssymmetrische Theorie ganz zu entkräften.

---

\*) Man könnte hier die Frage aufrollen, wieweit dieses Ergebnis durch die tatsächliche (hier nicht berücksichtigte) Verschiedenheit des räumlichen Verlaufes der Potentiale  $U(r)$  und  $V(r)$  betroffen wird. Eine qualitative Überlegung zeigt jedoch leicht, dass dadurch keine wesentliche Änderung des obigen Ergebnisses zu erreichen ist.

Für den günstigsten, in IV berechneten Fall (c) erhalten wir nämlich nur

$$\sigma(\pi) / \sigma\left(\frac{\pi}{2}\right) = 0,97, \quad \text{für } E_{\text{Kin}} = 14 \text{ MeV.}$$

(Für die Berechnung dieses Quotienten siehe Anhang 2.)

Demgegenüber erhält AMALDI<sup>1)</sup> für den gleichen Wert von  $E_{\text{Kin}}$ :

$$\sigma(\pi) / \sigma\left(\frac{\pi}{2}\right) = 0,52 \pm 0,03.$$

In diesem Zusammenhang soll nun aber einmal die Frage aufgeworfen werden, wie schwerwiegend eigentlich der Einwand des Experimentes gegen die symmetrische Theorie ist, m. a. W. welches Gewicht den Ergebnissen von AMALDI zukommt. Ausgangspunkt dieser Betrachtung ist der auffällig kleine Unterschied zwischen den gemessenen Werten des Gesamtstreuquerschnittes und den berechneten Werten für  $S$ -Streuung allein (berechnet auf Grund einer kurzreichweitigen Zentralkraft); demnach würde auch bei 14 MeV Neutronenenergie im wesentlichen nur erst  $S$ -Streuung vorliegen. Die Phasen der  $P$ -Wellen müssten also noch klein sein; in diesem Falle ist aber auch eine wesentliche Anisotropie der Streuung ausgeschlossen. Nun hatten zwar RARITA und SCHWINGER<sup>11)</sup> bemerkt, dass man bei Annahme nichtzentraler Kräfte (Tensorkräfte) kleinere Werte des  $S$ -Streuquerschnittes erhält als für zentrale Kräfte; dies gilt aber nur für kleine Energien (die Reduktion beträgt dort 2—3%), für Energien um 15 MeV ist der Unterschied belanglos. Daran kann auch die Annahme isobarer Zustände nichts ändern, solange letztere nur mit sehr kleinen Wahrscheinlichkeiten angeregt sind. Eine Durchrechnung dieses Problemes ist auf Grund der in II dargestellten Methode leicht möglich und ergibt folgendes Bild für 15 MeV-Neutronen: Der integrale Querschnitt für ( ${}^3S_1 + {}^3D_1$ )-Streuung wird, unter Annahme der in III für  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm und  $\varepsilon = 30$  MeV erhaltenen Werte von  $U$  und  $V$ , innerhalb der Rechengenauigkeit ( $\sim 1/2\%$ ) gleich gross wie der Querschnitt für  ${}^3S$ -Streuung unter Zugrundelegung eines gewöhnlichen Kastenpotentials gleicher Reichweite, nämlich zu

$$\sigma_{\text{Tripl.}} = 0,695 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

(Im Anhang, Abschnitt 3, ist eine kurze Beschreibung der Rechnung gegeben.)

Damit bleibt der oben erwähnte Einwand gegen die Messresultate von AMALDI bestehen; des weiteren sagt obiges Resultat aus, dass es zur Bestimmung der  $S$ -Streuquerschnitte genügt, zentrale Kräfte anzunehmen. Eine gewisse Schwankungsbreite

erhalten die Werte von  $\sigma$  noch infolge unserer Unkenntnis der genauen  $r$ -Abhängigkeit der Wechselwirkung. Die unter verschiedenen diesbezüglichen Annahmen durchgeführten Rechnungen ergeben jedoch nur wenig voneinander abweichende Ergebnisse,

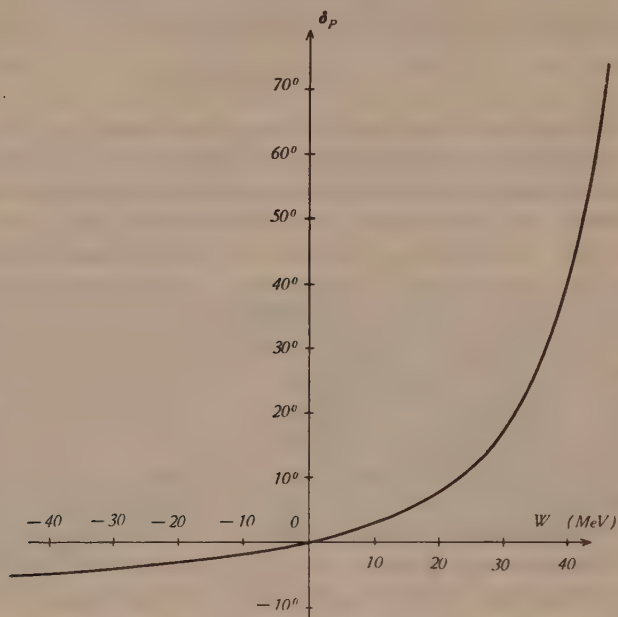


Fig. 2.

Beziehung zwischen Potentialtiefe  $W$  und der Phase  $\delta_p$  der  $P$ -Wellen für  $E_{\text{kin}} = 15$  MeV. Kastenpotential mit  $r_0 = 2,6 \cdot 10^{-13}$  cm.

und wir werden für das Folgende einfach die minimalen so erhaltenen Werte zuziehen. Wir stellen nun einiges Material zusammen:

a) Berechnete Werte für  $S$ -Streuung ( $\frac{1}{4} \sigma(^1S) + \frac{3}{4} \sigma(^3S)$ ) für  $E = 14$  MeV, in Einheiten  $10^{-24}$  cm<sup>2</sup>:

1: Kastenpotential	mit $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$ cm:	$\sigma_s = 0,685$
2: „	mit $r_0 = 2,0 \cdot 10^{-13}$ cm:	$\sigma_s = 0,710$
3: Yukawapotential*)	mit $a = 1,92 \cdot 10^{-13}$ cm:	$\sigma_s = 0,621$
4: Exponentialpotential**)	mit $a = 2,0 \cdot 10^{-13}$ cm:	$\sigma_s = 0,616$
5: „	mit $a = 1,5 \cdot 10^{-13}$ cm:	$\sigma_s = 0,643$

\*)  $V = V_0 \frac{1}{r} \exp(-r/a)$ ; im Sinne der Mesontheorie ist  $a = \hbar/Mc$ , wo  $M$  die Mesonmasse darstellt. Der hier gegebene Wert von  $a$  entspricht  $M = 200$  me<sub>1</sub>; die Berechnung des Streuquerschnittes stammt von HULTHÉN<sup>12</sup>).

\*\*)  $V = V_0 \exp(-r/a)$ ; für die Berechnung der entsprechenden Streuquerschnitte siehe Anhang, 4.

b) Gemessene Werte des totalen Streuquerschnittes für  $E = 14$  MeV:

$$1: \text{Nach AGENO}^{13}): \quad \sigma_{\text{tot}} = 0,694 \pm 0,019$$

$$2: \text{Nach SALANT und RAMSEY}^{14}): \sigma_{\text{tot}} = 0,70 \pm 0,06$$

1) ist wohl der genaueste z. Z. bekannte Wert. Ein Vergleich der minimalen berechneten Werte:  $\sigma_s \gtrsim 0,615$  mit der Obergrenze des Wertes von AGENO: 0,713 ergibt als Beitrag der  $P$ -Wellen zum Gesamtstreuquerschnitt den Höchstwert von

$$\underline{\sigma_P \lesssim 0,10 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.} \quad (32)$$

Auf Grund der in Fig. 2 dargestellten Beziehung zwischen Phase und Potentialtiefe für  $P$ -Wellen erkennt man, dass man im Falle grosser Aufspaltung der Triplett- $P$ -Terme den Einfluss der  $P$ -Wellen schon mit guter Näherung beschreibt, falls man nur die zum tiefstliegenden der drei Potentiale gehörende Phase berücksichtigt. Unter dieser Voraussetzung kann man für die in Frage kommenden Fälle eine Beziehung zwischen dem Wert von  $\sigma_{\text{tot}}$  und dem des Quotienten  $\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$  aufstellen. Ausgehend von der Formel für  $\sigma(\vartheta)$  (siehe z. B. bei KITTEL und BREIT<sup>15</sup>); in Gleichung (33) ist das  $I-I'$ -Interferenzglied etwas anders dargestellt als bei den genannten Autoren):

$$\begin{aligned} k^2 \cdot \sigma(\vartheta) = & \frac{1}{4} \cdot \sin^2 \delta_{1S} + \frac{3}{4} \cdot \sin^2 \delta_{3S} + 6 \cdot \cos \vartheta \left\{ \frac{1}{4} \cdot \sin \delta_{1S} \cdot \sin \delta_{1P} \cdot \right. \\ & \cdot \cos(\delta_{1S} - \delta_{1P}) + \frac{3}{4} \cdot \sin \delta_{3S} \left[ \frac{5}{9} \sin \delta_{3P_2} \cdot \cos(\delta_{3S} - \delta_{3P_2}) + \frac{3}{9} \sin \delta_{3P_1} \cdot \right. \\ & \cdot \cos(\delta_{3S} - \delta_{3P_1}) + \frac{1}{9} \sin \delta_{3P_0} \cdot \cos(\delta_{3S} - \delta_{3P_0}) \left. \right\} \\ & + 9 \cdot \cos^2 \vartheta \cdot \left\{ \frac{1}{4} \sin^2 \delta_{1P} + \frac{3}{4} \cdot \left[ \frac{5}{9} \sin^2 \delta_{3P_2} + \frac{3}{9} \sin^2 \delta_{3P_1} + \frac{1}{9} \sin^2 \delta_{3P_0} \right] \right\} \\ & + \frac{1}{4} \cdot (3 \cdot \cos^2 \vartheta - 1) \left\{ \sin^2(\delta_{3P_2} - \delta_{3P_0}) + \frac{9}{4} \sin^2(\delta_{3P_2} - \delta_{3P_1}) \right\} + \dots \quad (33) \end{aligned}$$

erhält man durch Spezialisierung auf die Fälle

$$a): \delta_{3P_1}, \delta_{3P_2}, \delta_{1P} \cong 0. \quad b): \delta_{3P_0}, \delta_{3P_1}, \delta_{1P} \cong 0.$$

$$c): \delta_{3P_0}, \delta_{3P_1}, \delta_{1P} \cong 0$$

den folgenden Zusammenhang zwischen  $\sigma_P$  und  $\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$ :



Tabelle 4.

$\delta_{3F_0}$	$\sigma_P$	$\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$	$\delta_{3P_1}$	$\sigma_P$	$\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$	$\delta_{3F_2}$	$\sigma_P$	$\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$
90°	0,189	0,570	60°	0,425	0,438	45°	0,472	0,242
60	0,142	0,644	49 1/3	0,324	0,520	30	0,236	0,520
45	0,094	0,741	45	0,284	0,560	22 1/2	0,138	0,678
30	0,047	0,854	30	0,142	0,731	15	0,063	0,825

Die Interpretation dieser Werte im Rahmen der Mesontheorie erlaubt es, anhand von (32) den Höchstwert der massgebenden Phase  $\delta_{3P}$  abzuschätzen und damit zu einer Aussage über die möglichen Werte von  $\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$  zu gelangen:

1) Symmetrische Theorie.

Der tiefstliegende Term ist hier  $^3P_0$ ; nach (32) und Tabelle 4 ist die maximal zulässige Phase etwa 45°; damit wird aber der AMALDISCHE Wert von  $\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right) = 0,52$  bei weitem nicht erreicht.

2) Charged Theory.

Die relative Lage der Triplett- $P$ -Terme ist hier die gleiche wie in 1), die Aufspaltung aber grösser (dreimal, gleichen Wert von  $U$  wie in 1) vorausgesetzt). Es gilt also hier das in 1) Gesagte.

3) Neutrale Theorie.

Die  $^3P$ -Terme liegen umgekehrt wie in 1) und 2); zutiefst liegt  $^3P_1$ ; nach Tabelle 4 ist die Situation hier wesentlich ungünstiger als in den Fällen 1) und 2); zum AMALDISCHEN Wert von 0,52 gehört ein  $\sigma_P = 0,324 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup>; dadurch würde der Gesamtstreuquerschnitt auf rund  $0,94 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup> erhöht, in völligem Widerspruch mit der Erfahrung.

Wir beachten, dass die Unmöglichkeit, die AMALDISCHEN Werte in Übereinstimmung mit der Forderung (32) zu bringen, weitgehend unabhängig vom benützten Modell ist; sie beruht einfach darauf, dass in jedem denkbaren Falle durch den Wert 0,52 von  $\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$  zu grosse Phasen für die massgebenden  $P$ -Wellen angefordert werden. Die Vermutung liegt daher nahe, dass die von AMALDI gemessenen Werte etwas zu klein sind; diese Feststellung würde jedenfalls nicht im Widerspruch stehen mit den bisheri-

gen Messungen von CHAMPION und POWELL<sup>1)</sup>\*). Auf alle Fälle kann gesagt werden, dass hier eine Schwierigkeit liegt, von der jedes der genannten Modelle betroffen wird. Es erscheint daher beim derzeitigen Stand der experimentellen Daten als nicht angebracht, die drei obengenannten Varianten gegeneinander auszuspielen; insbesondere erscheint die symmetrische Theorie nicht unbedingt gegenüber den andern benachteiligt.

## VI. Anhang.

### 1) Zum Variationsverfahren im kontinuierlichen Eigenwertspektrum.

Falls man nicht mit einem Kastenpotential operiert, muss man das Problem folgendermassen formulieren: Man definiert zuerst

$$\overline{(H-E)} = \sum_s \int_0^\infty k dr F_s(r) \sum_{s'} (H_{ss'} - E \delta_{ss'}) F_{s'}(r).$$

Falls  $E$  kleiner ist als die Anregungsenergie der Isobaren, so sind die  $F_{JL\frac{1}{2}\frac{1}{2}}(r)$  ( $J=1$  oder  $0$ ) die einzigen oszillatorischen Komponenten. Mit

$$\begin{aligned} \delta F_{JL\frac{1}{2}\frac{1}{2}}(r \rightarrow \infty) &= a_L \cos\left(kr - \frac{L\pi}{2} + \varphi_L\right) \delta \varphi_L + \\ &+ \delta a_L \sin\left(kr - \frac{L\pi}{2} + \varphi_L\right) \end{aligned}$$

wird dann

$$\delta \overline{(H-E)} = 2 \sum_s \int_0^\infty k dr \delta F_s(r) \sum_{s'} (H_{ss'} - E \delta_{ss'}) F_{s'}(r) + E \sum_{(L)} a_L^2 \delta \varphi_L.$$

Die Schrödingergleichung ist also äquivalent dem Variationsproblem: Es soll die Variation von  $\overline{(H-E)}$  verschwinden, unter der Bedingung, dass die Phasen der oszillatorischen Komponenten nicht variiert werden. Im Gegensatz zur Formulierung dieses Problems bei HULTHÉN<sup>12)</sup> halten wir hier darauf, von vornherein die Stationarität der Phasen zu verlangen. Diese Bedingung ist in der Tat gleichwertig den üblichen, an die in Frage kommenden Funktionen gestellten Randbedingungen: Setzt man nämlich etwa für  $r > a$  in  $\overline{(H-E)}$  die exakten Lösungen ein, so legt die Forde-

\*) Anm. bei der Korrektur: Nach einer Mitteilung von C. F. POWELL am Internat. Physik-Kongress in Cambridge vom Juli 1946 ergibt die Auswertung seiner neuesten Messungen eine sehr schwache, möglicherweise sogar negative Anisotropie, also ein Resultat, das qualitativ mit den Aussagen der symmetrischen Theorie im Falle schwacher Kopplung verträglich wäre.

zung  $\delta\varphi_L = 0$  der nurmehr im Bereich  $0 < r < a$  zu variierenden Funktion  $F_s(r)$  die Randbedingung

$$\delta\left(\frac{d}{dr} \log F_s(r)\right)_{r=a} = 0 \quad \text{d. h.} \quad \left(\frac{d}{dr} \log F_s(r)\right)_{r=a} = \left(\frac{d}{dr} \log \delta F_s(r)\right)_{r=a}$$

auf; dies ist aber die gleiche Bedingung, die den  $F$ -Komponenten im Falle eines eigentlichen Eigenwertproblems durch die Forderung  $\lim_{r \rightarrow a} F_s(r) = 0$  auferlegt ist (vgl. (7)).

## 2) Die Bestimmung von $\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right)$ .

Wir stützen uns hier auf eine von WENTZEL angegebene Formel (Gleichung (2) in <sup>3)</sup>), welche für das in II beschriebene Deuteronmodell die adiabatischen  $P$ -Potentiale in Form einer Entwicklung nach  $U/\varepsilon$  und  $V/\varepsilon$  darstellt:

$$W(^3P_I) = \frac{1}{27} (3V + 20 \cdot c_I U) - \frac{32(6V - 5 \cdot c_I U)^2 + 25(3V + 2 \cdot c_I U)^2}{2187 \varepsilon} - \delta_{I2} \frac{14 U^2}{675 \varepsilon} + \dots;$$

die Konstante  $c_I$  hat für  $I = 0, 1, 2$  den Wert:

$$c_0 = -\frac{1}{5}, \quad c_1 = \frac{1}{10}, \quad c_2 = -\frac{1}{50} \quad \left( \sum_I (2I+1) \cdot c_I = 0 \right).$$

Mit den Werten  $r_0 = 2,6 \cdot 10^{-13}$  cm,  $U = 150$ ,  $V = 18,2$ ,  $\varepsilon = 180$  MeV erhält man

$$W(^3P_0) = -20,2 - 5,4 = -25,6 \text{ MeV},$$

$$W(^3P_1) = +13,1 - 0,5 = +12,6 \text{ MeV},$$

$$W(^3P_2) = -0,2 - 4,0 = -4,2 \text{ MeV}.$$

Die entsprechenden Phasen sind:  $\delta_{^3P_0} = 11^\circ 50'$ ,  $\delta_{^3P_1} = -2^\circ 20'$ ,  $\delta_{^3P_2} = +1^\circ 0'$ , und mit (33) folgt  $\sigma(\pi)/\sigma\left(\frac{\pi}{2}\right) = 0,970$ .

## 3) Die Bestimmung des Querschnittes für $(^3S_1 + ^3D_1)$ -Streuung.

Die Hamiltonfunktion dieses Problems ist die gleiche wie im Falle des Deuteron-Grundzustandes, d. h. entspricht den Quantenzahlen  $I = 1$ ,  $K = 0$ ,  $L$  gerade,  $J$  ungerade. Die  $F$ -Komponenten  $10\frac{1}{2}$  und  $12\frac{1}{2}$  haben im Aussenraum den Verlauf

$$F_{10\frac{1}{2}}(x) \sim \sin(kx + \varphi_0) \quad (34a)$$

$$F_{12\frac{1}{2}}(x) \sim \sin(kx, \varphi_2) \quad (34b)$$

mit  $k^2 = \frac{Mr_0^2}{h^2} \cdot \frac{E_{\text{kin}}}{2}$  und  $\sin(y, \varphi) = \left(1 - \frac{3}{y^2}\right) \sin(y + \varphi) + \frac{3}{y} \cos(y + \varphi)$ .

Wir betrachten nur reelle Lösungen des Variationsproblems. Infolgedessen sind  $\varphi_1$  und  $\varphi_2$  zwei reelle Phasen; sie sind aber im allgemeinen nicht identisch mit den sogenannten „Phasen“ der gestörten Wellen. Für die gleichen Komponenten setzen wir im Innenraum an:

$$F_{10\frac{1}{2}}(x) = \frac{1}{2} \cdot \{3x - x^3 + \lambda_0(x - x^3)\} \quad (35a)$$

$$F_{12\frac{1}{2}}(x) = a_2 \cdot \left\{ (2x^2 - x^4) + \frac{1}{2} \lambda_2(x^2 - x^4) \right\}. \quad (35b)$$

Die Bedingungen für den stetigen Anschluss der logarithmischen Ableitungen an die Ausdrücke (34) sind:

$$k \cdot \operatorname{ctg}(k + \varphi_0) = -\lambda_0 \quad (36a)$$

$$\frac{k \cdot \cos(k + \varphi_2) - \sin(k + \varphi_2)}{\sin(k, \varphi_2)} = 2 - \lambda_2. \quad (36b)$$

Das Gleichungssystem (10) ergibt, mit den Ausdrücken (35a, b), nach Elimination aller übrigen Amplitudenparameter zwei Gleichungen zwischen den drei Größen  $\lambda_0$ ,  $\lambda_2$  und  $a_2$ . Wie schon in II bemerkt wurde, muss demnach zur vollständigen Festlegung des Problems die Ausstrahlungsbedingung zugezogen werden; diese verlangt, dass die oszillatorischen  $F$ -Komponenten, die zum Wertepaar  $I, M_I = M$  (in der Planwelle ist  $M_L = 0$ ;  $M$  bedeutet im folgenden immer den Anfangswert der Spin-komponente) gehören, von der folgenden asymptotischen Form sind:

$$F_{JL\frac{1}{2}}(x \rightarrow \infty) = \text{const } i^L \sqrt{2L+1} e^{i\delta_L} b_{0,M}^I(J, L) \cdot \sin\left(kx - \frac{L\pi}{2} + \delta_L\right) \quad (37)$$

Die  $b_{M,M'}^I(J, L)$  bedeuten hier die normierten Koeffizienten der CLEBSCH-GORDANSchen Reihe für die Zusammensetzung der Drehimpulse  $\tilde{J} + \tilde{L} = \tilde{I}$ .

Nach (37) hängen die Phasen  $\delta$  ausser von  $L$  speziell noch von der „Anfangspolarisation“  $M$  ab. Gehören nun zu einem durch  $I, M_I, K$  und die Paritäten von  $J$  und  $L$  festgelegten Problem wie im Falle der ( $^3S_1 + ^3D_1$ )-Streuung zwei oszillatorische Komponenten, so ist die Bedingung (37) nicht mit reellen Phasen zu erfüllen. Zur Lösung der Aufgabe mit Hilfe des genannten Variationsverfahrens geht man daher praktisch wie folgt vor: Man zerlegt (37) nach Abspaltung eines passend gewählten Phasen-



faktors in einen Real- und einen Imaginärteil; in dem hier betrachteten Falle also mit  $\delta = \eta + i\zeta$ :

$$\begin{aligned}
 F_{10\frac{1}{2}}(x) &= \text{const } e^{i\delta_0} \cdot \sin(kx + \delta_0) \\
 &= \text{const } e^{i\delta_0} \left\{ Ch \zeta_0 \sin(kx + \eta_0) - i Sh \zeta_0 \sin\left(kx + \eta_0 - \frac{\pi}{2}\right) \right\}, \\
 F_{12\frac{1}{2}}(x) &= \text{const } e^{i\delta_0} \{ b_{0,M}^1(1, 2) \sqrt{5} e^{i(\delta_2 - \delta_0)} \sin(kx, \delta_2) \} \\
 &= \text{const } e^{i\delta_0} \{ b_{0,M}^1(1, 2) \sqrt{5} e^{-(\zeta_2 - \zeta_0)} (\sqrt{\cos^2(\eta_2 - \eta_0) + Sh^2 \zeta_2} \sin(kx, \eta_2 + \varepsilon) \\
 &\quad + i \sqrt{\sin^2(\eta_2 - \eta_0) + Sh^2 \zeta_2} \cdot \sin(kx, \eta_2 + \varepsilon^+)) \}
 \end{aligned}$$

mit  $\text{tg } \varepsilon = \text{tg } (\eta_0 - \eta_2) \text{Th } \zeta_2$ ;  $\text{tg } \varepsilon^+ = \text{ctg } (\eta_2 - \eta_0) \text{Th } \zeta_2$ .

Wir setzen demnach

$$\Re F_{10\frac{1}{2}} \sim \sin(kx + \eta_0), \quad (38a)$$

$$\begin{aligned}
 \Re F_{12\frac{1}{2}} &\sim \frac{\sqrt{5}}{Ch \zeta_0} b_{0,M}^1(1, 2) e^{-(\zeta_2 - \zeta_0)} \sqrt{\cos^2(\eta_2 - \eta_0) + Sh^2 \zeta_2} \cdot \\
 &\quad \cdot \sin(kx, \eta_2 + \varepsilon), \quad (38b)
 \end{aligned}$$

$$\Im F_{10\frac{1}{2}} \sim \sin\left(kx + \eta_0 - \frac{\pi}{2}\right), \quad (39a)$$

$$\begin{aligned}
 \Im F_{12\frac{1}{2}} &\sim \frac{-\sqrt{5}}{Sh \zeta_2} b_{0,M}^1(1, 2) e^{-(\zeta_2 - \zeta_0)} \sqrt{\sin^2(\eta_2 - \eta_0) + Sh^2 \zeta_2} \cdot \\
 &\quad \cdot \sin(kx, \eta_2 + \varepsilon^+). \quad (39b)
 \end{aligned}$$

Diese Ausdrücke sind nun von der Form (34a, b), und eine Identifikation der Real- resp. der Imaginärteile ergibt:

$$\varphi_0 = \eta_0; \quad \varphi_2 = \eta_2 + \varepsilon;$$

$$a_2 \frac{\sin(k + \varphi_0)}{\sin(k, \varphi_2)} = \frac{\sqrt{5}}{Ch \zeta_0} b_{0,M}^1(1, 2) e^{-(\zeta_2 - \zeta_0)} \sqrt{\cos^2(\eta_2 - \eta_0) + Sh^2 \zeta_2},$$

$$\varphi_0^+ = \eta_0 - \frac{\pi}{2}; \quad \varphi_2^+ = \eta_2 + \varepsilon^+;$$

$$a_2^+ \frac{\sin(k + \varphi_0^+)}{\sin(k, \varphi_2^+)} = \frac{\sqrt{5}}{Sh \zeta_0} b_{0,M}^1(1, 2) e^{-(\zeta_2 - \zeta_0)} \sqrt{\sin^2(\eta_2 - \eta_0) + Sh^2 \zeta_2}.$$

Dadurch sind die 6 Grössen  $\varphi_0, \varphi_2, a_2$  und  $\varphi_0^+, \varphi_2^+, a_2^+$ , oder, vermittelt (36a, b), die 6 Grössen  $\lambda_0, \lambda_2, a_2$  und  $\lambda_0^+, \lambda_2^+, a_2^+$  als Funktionen der vier Parameter  $\eta_0, \zeta_0, \eta_2, \zeta_2$  dargestellt. Wie oben bemerkt wurde, sind indes durch Gleichung (10) zwischen diesen 6 Grössen gerade vier Beziehungen aufgestellt; diese erlauben die Festlegung der vier Parameter  $\eta_0, \zeta_0, \eta_2, \zeta_2$ .

Wir bemerken noch, dass für den Fall der ( $^3S_1 + ^3D_1$ )-Streuung infolge der zu  $J = 1$  möglichen zwei Werte von  $|M|$  bei diesem

Problem insgesamt 8 Phasen  $\eta_L^M, \zeta_L^M$  auftreten. Wegen des Bestehens von Differentialbeziehungen erster Ordnung zwischen den Lösungen der Schrödingergleichung (diese sind in <sup>11)</sup> ausführlich dargestellt) sind aber nur drei dieser Phasen unabhängig. Man braucht infolgedessen das Problem nur für einen Wert von  $M$  zu lösen; dass bei obiger Fassung des Lösungsverfahrens vier Phasen explizite eingehen, gibt eine Möglichkeit, die Güte des Verfahrens zu kontrollieren.

Nach (37) erhält man für den Gesamtstreuquerschnitt für Triplettstreuung

$$\sigma_{\text{tripl}} = \frac{4\pi}{k^2} \sum_L (2L+1) \frac{1}{3} \sum_{I,M} e^{-2\zeta_L^{IM}} |b_{0,M}^I(1, L)|^2 (\sin^2 \eta_L^{I,M} + \text{Sh}^2 \zeta_L^{I,M})$$

und speziell für die ( $^3S_1 + ^3D_1$ )-Streuung unter Berücksichtigung der zwischen den Phasen bestehenden Beziehungen:

$$\sigma = \frac{4\pi}{k^2} \{ e^{-2\zeta_0^{1,0}} (\sin^2 \eta_0^{1,0} + \sin^2 \eta_2^{1,1}) + (1 - e^{-2\zeta_0^{1,0}}) \}.$$

Für  $r_0 = 2,8 \cdot 10^{-13}$  cm und mit einer Neutronenenergie von 15 MeV werden

$$\eta_0^{1,0} = 1,482, \quad \eta_2^{1,1} = -0,019, \quad \zeta_0^{1,0} = -0,093.$$

Ein isotropes Kastenpotential gleicher Reichweite, dessen Tiefe der Bindungsenergie des Deuteron-Grundzustandes angepasst ist, ergibt dagegen  $\delta_0 = 1,461$ . Der sich daraus ergebende Wert von  $\sigma_{\text{tr.pl.}}$  ist in beiden Fällen praktisch gleich gross.

#### 4) Die Bestimmung der Streuquerschnitte.

Das Eigenwert- und Streuproblem für die  $S$ -Zustände eines Zweikörpersystemes mit einem Wechselwirkungspotential  $U(r) = -V_0 \exp(-r/a)$  lässt sich auf die Diskussion einer Besselfunktion zurückführen. Es sei

$$A = \frac{Ma^2}{\hbar^2} V_0 \quad \text{und} \quad z^2 = -\frac{Ma^2}{\hbar^2} E$$

d. h.  $z$  ist rein imaginär für  $E > 0$ , reell für  $E < 0$ .

Die Berücksichtigung der Randbedingung für die Eigenfunktion  $f(r)$  führt auf eine Funktion  $K_z(A)$ , definiert durch

$$K_z(A) = 1 + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n!} A^n \cdot \prod_{\varepsilon=1}^n \frac{1}{2z+\varepsilon} = \Gamma(1+2z) \frac{1}{A^z} \cdot J_{2z}(2\sqrt{A}). \quad (40)$$

Die Eigenwerte sind dann festgelegt (bei vorgegebenem  $a$  und  $A$ )

durch die Nullstellen der Funktion  $K_z(A)$  für positiv reelle  $z$ -Werte ( $z = \kappa$ ):

$$J_{2\kappa}(2\sqrt{A}) = 0.$$

(Siehe z. B. bei BETHE und BACHER<sup>16</sup>); daselbst ist eine Tabelle von Wertepaaren  $a, A$  angegeben, die die richtige Bindungsenergie für den Deuteron-Grundzustand ergeben.) Zur Bestimmung von  $A(^1S)$  wurde hier  $E(^1S) = 0$  angenommen.

Die Phasen der gestörten  $S$ -Wellen sind ebenfalls durch  $K_z(A)$  festgelegt; es ist nämlich

$$\delta = \arg K_{ik}(A);$$

$k$  bedeutet die Wellenzahl der  $S$ -Welle in Einheiten  $1/a$ .

Die Reihe (40) konvergiert nun sehr rasch, so dass die Bestimmung der Phasen ohne Mühe durchgeführt werden kann.

Die vorliegende Arbeit entstand auf Anregung meines verehrten Lehrers, Herrn Prof. Dr. G. WENTZEL. Ich möchte ihm an dieser Stelle für die vielen, freundlichst gewährten Ratschläge meinen verbindlichsten Dank aussprechen.

Zürich, Physikalisches Institut der Eidg. Techn. Hochschule.

#### Literatur.

- <sup>1</sup>) C. F. POWELL, H. HEITLER, F. C. CHAMPION, *Nature* **146**, 716 (1940). E. AMALDI, D. BOCCIARELLI, B. FERRETTI, C. TRABACCHI, *Naturwiss.* **30**, 482 (1942). H. TATEL, *Phys. Rev.* **61**, 450 (1942). C. F. POWELL, F. C. CHAMPION, *Proc. Roy. Soc. A* **183**, 64 (1944).
- <sup>2</sup>) J. SCHWINGER, *Bull. American Phys. Soc.* **16**, Nr. 7, S. 7 (1941).
- <sup>3</sup>) G. WENTZEL, *Helv. Phys. Acta* **18**, 430 (1945).
- <sup>4</sup>) M. FIERZ und G. WENTZEL, *Helv. Phys. Acta* **17**, 215 (1944). G. WENTZEL, *Helv. Phys. Acta* **17**, 252 (1944).
- <sup>5</sup>) M. FIERZ, *Helv. Phys. Acta* **17**, 181 (1944), und **18**, 158 (1945).
- <sup>6</sup>) W. PAULI und S. M. DANCOFF, *Phys. Rev.* **62**, 85 (1942). G. WENTZEL, *Helv. Phys. Acta* **16**, 551 (1943).
- <sup>7</sup>) M. FIERZ, *Helv. Phys. Acta* **18**, 158 (1945).
- <sup>8</sup>) J. M. B. KELLOGG, I. I. RABI, N. F. RAMSEY, J. R. ZACHARIAS, *Phys. Rev.* **57**, 677 (1940).
- <sup>9</sup>) N. KEMMER, *Proc. Roy. Soc. A* **166**, 127 (1938).
- <sup>10</sup>) F. COESTER, *Helv. Phys. Acta* **17**, 35 (1944).
- <sup>11</sup>) W. RARITA und J. SCHWINGER, *Phys. Rev.* **59**, 436 (1941).
- <sup>12</sup>) L. HULTHÉN, *Kungl. Fys. Sälls. i Lund Förhandl.* **14**, No 21 (1944).
- <sup>13</sup>) M. AGENO, E. AMALDI, D. BOCCIARELLI, C. TRABACCHI, *Il nuovo Cimento* **I/3** (1943).
- <sup>14</sup>) E. O. SALANT und N. F. RAMSEY, *Phys. Rev.* **57**, 1075 (1940).
- <sup>15</sup>) C. KITTEL und G. BREIT, *Phys. Rev.* **56**, 744 (1939).
- <sup>16</sup>) H. A. BETHE und R. F. BACHER, *Rev. of Modern Physics* **8**, 82 (1936).

# Über den Schroteffekt und die Empfangsempfindlichkeit von Laufzeitröhren verschiedener Typen\*)

von F. Lüdi, Brown Boveri & Cie., Baden.

(21. VI. 1946.)

*Inhalt:* In Teil I wird die fundamentale SCHOTTKYSche Gleichung für das Röhrenrauschen auf inkohärente Elektronenübergänge erweitert. In Teil II erfolgt die sinngemässe Anwendung der erweiterten Rauschgleichung zur Berechnung der Empfangsempfindlichkeit der verschiedenen Laufzeittypen in verschiedenen Schaltungen. Die möglichen Empfindlichkeitsgrade werden untereinander und mit der Empfindlichkeit von Trioden verglichen. Eine Zusammenstellung der Resultate findet sich am Schluss. Daraus folgt, dass bei Laufzeitschwingungen (Mikrowellen) nur der Überlagerungsempfang für genügende Empfindlichkeit geeignet ist.\*\*)

## I.

§ 1. Die Theorie des Schroteffektes hat bekanntlich sehr an Durchsichtigkeit gewonnen, als SCHOTTKY<sup>1) 2)</sup> selbst die Fourieranalyse statt wie ursprünglich auf die Schwankungen des Gesamtstromes auf die einzelnen Elektronenübergänge anwandte. Durch inkohärente Superposition der Amplitudenquadrate der Fourierglieder aller Elementarprozesse wird dann die Schrotgleichung in einfachster Weise erhalten. Dadurch wird die Schwankungsformel für unabhängige Ereignisse

$$\overline{N_T^2} = \overline{n_T}$$

umgangen, und „mehr ist von statistischen Sätzen nicht nötig“<sup>2)</sup>. Dieser Gedanke soll vorerst im Hinblick auf die nachfolgende Erweiterung in expliziter Form skizziert werden, da es darauf ankommt zu bemerken, wo kohärent und wo inkohärent summiert werden muss.

---

\*) Referat an der Schweiz. physik. Tagung in Solothurn (Mai 1945), siehe HPA. Vol. XVIII, Fasc. Quart. S. 265, 1945.

\*\*) Die inzwischen bekannt gewordenen Empfangsmethoden auf dem Mikrowellengebiet scheinen die theoretische Voraussage zu bestätigen.



Die einzelnen Elektronenstösse seien durch eine Fourierreihe mit Einbeziehung der Startzeit  $t_n = 0 \div T$  dargestellt, Fig. 1.

$$J_n(t) = a_0 + \sum_{k=1}^{\infty} a_k \cos \frac{2\pi k}{T} (t - t_n) + \sum_{k=1}^{\infty} b_k \sin \frac{2\pi k}{T} (t - t_n). \quad (1)$$

$T$  ist das beliebige grosse Zeitintervall, währenddem  $N$  Elektronen in einer gesättigten Diode übergehen. Bei der Bestimmung der Fourierkoeffizienten dürfen die Integrationsgrenzen verschoben werden, und man erhält in bekannter Weise:

$$\begin{aligned} a_k &= \frac{2}{T} \int_{t=t_n}^{t=t_n+T} J_n(t) \cos \frac{2\pi k}{T} (t - t_n) dt \\ a_0 &= \overline{J_n(t)} \\ b_k &= \frac{2}{T} \int_{t=t_n}^{t=t_n+T} J_n(t) \sin \frac{2\pi k}{T} (t - t_n) dt. \end{aligned} \quad (2)$$

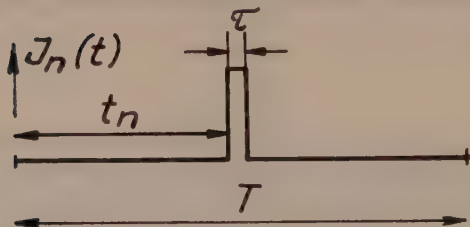


Fig. 1.

Dadurch werden also die  $a_k, b_k$  von der Startzeit unabhängig, ganz gleich ob die Flugzeit  $\tau$  klein oder vergleichbar mit der  $k$ -ten Periode  $T/k$  ist; der zweite Fall umfasst den frequenzabhängigen Schroteffekt<sup>3)</sup>.

Gefragt wird jetzt nach dem quadratischen Mittelwert (Effektivwert) des totalen Stromes; dieser ist

$$\overline{J^2} = \overline{(J_1 + J_2 + \dots + J_N)^2} = \frac{1}{T} \int_0^T \sum_{n=1}^N \sum_{n'=1}^N J_n(t) \cdot J_{n'}(t) dt. \quad (3)$$

Die Ausrechnung geschieht in der Weise, dass unter Benützung von (1) die einzelnen Glieder der Doppelsumme (Produkte von je zwei Fourierreihen) mit Berücksichtigung der Orthogonalitätseigenschaften der sin- und cos-Funktionen gemittelt werden.

Nach einiger Rechnung bleibt noch die Summation über  $n$  und  $n'$  in folgender Form.

$$\overline{J^2} = a_0^2 N^2 + \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{\infty} (a_k^2 + b_k^2) \cdot \sum_1^N \sum_1^{N'} \cos \frac{2\pi k}{T} (t_n - t_{n'}). \quad (4)$$

Das erste Glied ist offenbar das Gleichstromquadrat  $I^2$ , da  $a_0 = \frac{e}{T}$  und  $N = \frac{IT}{e}$  ist. Das zweite Glied ist das überlagerte Schwankungsquadrat  $\overline{J}_{\text{schr}}^2$ .

In (4) kommt nun der Unterschied zwischen statistischer Abhängigkeit und Unabhängigkeit besonders gut zum Vorschein. Bei *gleichmässig* verteilten Startzeiten, entsprechend statistischer Abhängigkeit verschwindet die Doppelsumme und damit die Schwankung, wie es sein muss. Bei gleichwahrscheinlich verteilten Startzeiten kann die Doppelsumme zerlegt werden.

$$\overline{J}_{\text{schr}}^2 = \frac{1}{2} \sum_{k=1}^{\infty} (a_k^2 + b_k^2) \left[ N + 2 \sum_{\substack{1 \\ t_n > t_{n'}}}^N \sum_1^{N'} \cos \frac{2\pi k}{T} (t_n - t_{n'}) \right].$$

Jetzt gibt es bei gleichwahrscheinlich, d. h. nach dem Zufall verteilten Startzeiten für jeden  $k$ -Wert im Mittel gleich viel positive wie negative  $\cos$ -Werte, so dass für grosse  $N$  das zweite Glied der eckigen Klammer gegen das erste bei dieser inkohärenten Summation verschwindet\*). Für einen Bereich  $k_1$  bis  $k_2$ , in dem die

\*) Zur Präzisierung sei folgendes bemerkt: Jeder Winkel  $\frac{2\pi k}{T} t_n$  für

die  $N$  Elektronenübergänge im Intervall  $T$  werde von sich selbst subtrahiert; die Summe dieser  $\cos$  (der identischen Elektronen) gibt die Zahl  $N$  in der eckigen Klammer. Dann bleiben noch  $N^2 - N$  nach dem Zufall verteilte Winkeldifferenzen, und weil  $\cos$  eine gerade Funktion ist, reduziert sich die Doppelsumme auf  $2\frac{1}{2} N(N-1)$  verschiedene Summanden, was durch die Summation über  $t_n > t_{n'}$  ausgedrückt wird. Es besteht dann eine gewisse Wahrscheinlichkeit (für den Betrag  $r$   $W(r, r+dr) = 2N^{-1} e^{-r^2/N} \cdot r dr$ ), dass die Doppelsumme einen bestimmten von Null verschiedenen Wert hat. Wird aber der „Wurf“ der  $N$  Phasen sehr oft wiederholt, dann gibt es statt eine einzige eine sehr grosse Zahl von zufälligen Winkelkombinationen, und die Summe über die  $\cos$  der Winkeldifferenzen verschwindet im Mittel, denn es gibt keinen Grund, dass eine zufällige Kombination vor einer andern ausgezeichnet ist. (Vgl. Lord RAYLEIGH, „The theory of sound“, 1894, § 42, Seite 34, wo der gleiche eckige Klammerausdruck diskutiert wird.)

Auf den Schroteffekt übertragen bedeutet die Wiederholung der zufälligen Phasenkombinationen die Wiederholung des Intervalles  $T$  mit den zufällig verteilten Startzeiten  $t_n$  der  $N$  Elektronenübergänge. Wenn z. B.  $T = 10^{-4}$  sek (noch gross gegen die Flugdauer  $\tau \approx 10^{-9}$  sek), so ist während einer Sekunde Beobachtungszeit das mittlere Schwankungsquadrat allein durch  $N$  gegeben.

Flugzeit klein ist gegen die betrachteten Perioden  $T/k_1$  bis  $T/k_2$ , wird speziell nach (2)

$$a_k = \frac{2e}{T} \quad b_k = 0$$

und weil  $a_k$  für diesen Bereich unabhängig von  $k$  ist

$$\overline{J_{\text{schr}}^2} = \frac{2e^2}{T^2} (k_2 - k_1) N.$$

Setzt man noch  $k_2/T - k_1/T = f_2 - f_1 = \Delta f$  und  $N = \frac{IT}{e}$ , so bekommt man die bekannte Schrotogleichung

$$\overline{J_{\text{schr}}^2} = 2eI\Delta f.$$

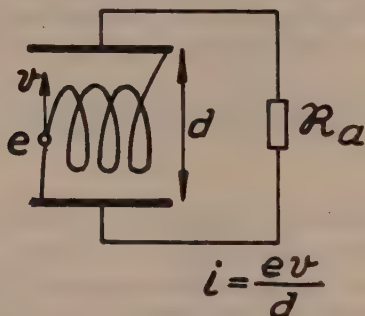


Fig. 2.

Bremsfeldröhre, Zweischlitzmagnetron.

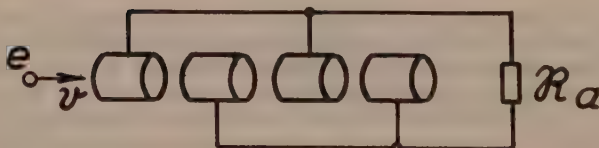


Fig. 3.

Klystron mit mehreren Modulationselektroden.

§ 2. Die Figuren 2 bis 4 zeigen, was unter  $m$ -maligen Elektronenübergängen gemeint ist.

Durch Influenz erzeugt das Elektron bei jedem Übergang zwischen zwei Elektroden den Influenzstrom

$$i = \frac{ev}{d}.$$

Das Zeitintegral über einen Durchgang gibt auch hier wie bei der Diode die influenzierte Ladung  $e$ . Für den Mechanismus nach Fig. 3 und 4 kann die Influenzzeit als klein gegen die Periode  $T$  gesetzt werden. Dieses gelte auch noch für Fig. 2; man kann sich das Elektron ruckweise bewegt denken, so dass die Flugdauer  $\tau$  klein gegen eine halbe Schwingungsperiode  $T_0$  ist. Man

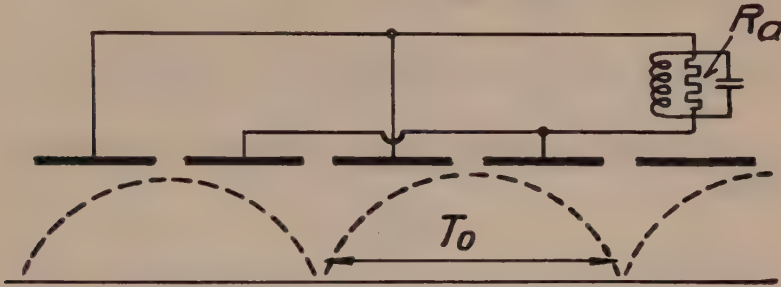


Fig. 4.

Magnetfeldröhre mit hochgeteilter Anode.

macht damit einen Fehler im Sinne zu grosser Berechnung des Schroteffektes (Nichtberücksichtigung des Schwächungsfaktors  $F$  nach SPENKE<sup>3)</sup>). Zu unterscheiden sind ferner alternierende oder gleichsinnige Stromstösse (Fig. 5), letztere z. B. für Fig. 4.



Fig. 5.

Die Bestimmung der Fourierkoeffizienten  $a_k$ ,  $b_k$  geschieht wie folgt:

$$\begin{aligned}
 a_k &= \frac{2}{T} \int_{t=t_n}^{t=t_n+T} J_n(t) \cos \frac{2\pi k}{T} (t-t_n) dt \\
 &= \frac{2}{T} \left[ \int_{t_n}^{t_n+\tau} J_n(t) \cos \frac{2\pi k}{T} (t-t_n) dt + \right. \\
 &\quad \left. + \dots (\mp 1)^m \int_{t_n+mT_0}^{t_n+mT_0+\tau} J_n(t+mT_0) \cos \frac{2\pi k}{T} (t+mT_0-t_n) dt \right]
 \end{aligned}$$



$(-1)^m$  alternierend,  $(+1)^m$  nicht alternierend. Mit der Voraussetzung, dass die Influenzdauer klein gegen  $T$  sei, wird

$$a_k = \frac{2e}{T} \sum_{l=1}^m (\mp 1)^l \cos \frac{2\pi k}{T} l T_0$$

oder in Exponentialform geschrieben:

$$a_k = \frac{e}{T} \left[ \sum_{l=1}^m \left( \mp e^{i \frac{2\pi}{T} T_0} \right)^l + \sum_{l=1}^m \left( \mp e^{-i \frac{2\pi}{T} T_0} \right)^l \right]. \quad (7)$$

Dies ist eine geometrische Reihe und mit der vorübergehenden Setzung

$$\alpha = \frac{2\pi k}{T} T_0$$

erhält man

$$a_k = \frac{e}{T} \left[ \frac{\mp e^{i\alpha(m+1)} - 1}{\mp e^{i\alpha} - 1} + \frac{\mp e^{-i\alpha(m+1)} - e}{\mp e^{-i\alpha} - 1} \right]. \quad (7')$$

Um wieder auf die reelle Schreibweise zurückzukommen, erweitern man den Zähler des ersten Summanden mit  $e^{\frac{-i\alpha(m+1)}{2}}$ , den Nenner mit  $e^{-i\alpha/2}$

$$\frac{e^{-i \frac{\alpha}{2}}}{e^{-i \frac{\alpha(m+1)}{2}}} \frac{\mp e^{i \frac{\alpha(m+1)}{2}} - e^{-i \frac{\alpha(m+1)}{2}}}{\mp e^{i \frac{\alpha}{2}} - e^{-i \frac{\alpha}{2}}} \quad (8)$$

Dann ist nach einem bekannten Satz die reelle Form von (7') gleich dem doppelten Realteil des ersten Summanden, also

$$a_k = \frac{2e}{T} \cos \left( \frac{m\pi k T_0}{T} \right) \frac{\cos (m+1) \frac{\pi k}{T} T_0}{\cos \frac{\pi k}{T} T_0} \quad (9)$$

im alternierenden Fall, und

$$a_k = \frac{2e}{T} \cos \left( \frac{m\pi k T_0}{T} \right) \frac{\sin (m+1) \frac{\pi k}{T} T_0}{\sin \frac{\pi k}{T} T_0} \quad (10)$$

im nichtalternierenden Fall, für  $b_k$  ist statt  $\cos \frac{m\pi k T_0}{T}$   $\sin \frac{m\pi k T_0}{T}$  zu schreiben.

Von besonderem Interesse sind die Nullstellen des Nenners; diese sind, wenn *alternierend*: bei

$$\frac{1}{\frac{T}{k}} = \frac{1}{\frac{2 T_0}{2 l + 1}} \quad l = 0, 1, 2, 3 \dots$$

dafür ist

$$e^{i \frac{2 \pi k}{T} T_0} = e^{-i \frac{2 \pi k}{T} T_0} = -1$$

und die geometrische Summe in (7) kann direkt angeschrieben werden; sie ist gleich  $m$ , so dass also

$$a_k = \frac{2 e}{T} m$$

und

$$b_k = 0$$

wird; wenn *nichtalternierend*, sind die Nullstellen bei

$$\frac{1}{T/k} = \frac{1}{T_0/l} \quad l = 0, 1, 2, 3 \dots$$

dafür ist

$$e^{i \frac{2 \pi k}{T} T_0} = e^{-i \frac{2 \pi k}{T} T_0} = +1$$

und die geometrische Summe wird ebenfalls gleich  $m$ , so dass

$$a_k = \frac{2 e}{T} m \quad b_k = 0.$$

Bedenkt man, dass  $k$  für diese Frequenz eine grosse Zahl ist, so gilt dieselbe Berechnung der Koeffizienten  $a_k, b_k$  auch noch im Bereich  $\Delta f = \frac{k_2}{T} - \frac{k_1}{T}$ , d. h. für die Bandbreite des Resonators.

Aus (9) (10) kann noch eine Näherungsformel für  $a_k b_k$  bei langen Wellen (kleine  $k$ ) erhalten werden. Ist

$$\frac{T_0}{T/k} \ll 1 \ll \frac{1}{(m+1) T_0}$$

so geht (9) über in

$$a_k = \frac{2 e}{T} \quad b_k = \frac{2 e}{T} m (m+1) \frac{\pi k T_0}{T} \approx 0$$

wenn auch noch

$$m (m+1) \frac{\pi k T_0}{T} \ll 1$$

ist. Die Fourierkoeffizienten sind in diesem Falle dieselben wie beim normalen Schroteffekt.

Wir halten fest: Die Bestimmung der Fourierkoeffizienten des Elementarprozesses gibt für Laufzeitschwingungen durch kohärente Summation den  $m$ -fachen Wert bei  $m$ -maligem Elektronendurchgang gegenüber demjenigen bei einmaligem Elektronendurchgang wie z. B. in Verstärkerröhren des Langwellengebietes. Für kleine Frequenzen resultieren jedoch auch bei  $m$ -maligem Elektronendurchgang die einfachen Werte der Fourierkoeffizienten. Die Summierung über alle Elementarprozesse geschieht dann durch inkohärente Addition der Amplitudenquadrate wie in § 1, ganz gleich wie kompliziert die Elektronenbewegungen im einzelnen sind; für diese inkohärente Addition ist nur die statistische Verteilung über die Startphase ausschlaggebend.

Es besteht eine gewisse Analogie zur Berechnung der Röntgenstreuung, wo über die Beiträge der Elektronen im einzelnen Atom kohärent, dagegen über die Beiträge aller Atome inkohärent summiert wird.

Die Konsequenzen von Teil I kommen im Teil II zum Ausdruck; wesentlich ist dann, ob mit Laufzeitröhren eine Hochfrequenzverstärkung oder eine Nieder- bzw. Zwischenfrequenzverstärkung gemacht wird. Im ersten Fall ist für die Empfindlichkeitsberechnung der verstärkte Schroteffekt

$$\overline{J}_{\text{schr}}^2 = 2 e I m^2 \Delta f$$

massgebend, im zweiten Fall die einfache Schrotgleichung

$$\overline{J}_{\text{schr}}^2 = 2 e I \Delta f.$$

## II.

Die Berechnung der Empfangsempfindlichkeit wird für alle Typen auf die einfachste Weise durchgeführt:

1. Vernachlässigung des Rauschens der Eingangswiderstände.
2. Am Eingangswiderstand stehe die halbe Empfangsleistung  $N$  zur Verfügung.

Wie die Rechnung zeigt, ist (1) für alle Laufzeittypen berechtigt, weil der äquivalente Eingangswiderstand (d. h. das Röhrenrauschen) viel grösser als das Widerstandsrauschen ist. Mit der Vereinfachung von (2) wird die genaue Antennenanpassung nicht berücksichtigt; aber man geht nicht sehr fehl in der Annahme, dass die Empfangsleistung zur Hälfte am transformierten An-

tennenwiderstand als Verlustleistung und zur andern Hälfte am Widerstand des Eingangskreises als Nutzleistung auftritt. Zum späteren Vergleich werde zuerst die Empfindlichkeit der Triode in Gradausverstärkung und in Pendelrückkopplungsschaltung in der angeführten Weise berechnet.

§ 3. Für die Triode ist die Gitterspannung nach vorigem durch die Empfangsleistung am Eingangswiderstand  $R_K$  zwischen Gitter und Kathode bestimmt durch

$$u_g^2 = N R_K$$

und der modulierte Signalstrom am Ausgang durch

$$J_{\text{sig}} = S \cdot u_g = S \sqrt{N R_K}.$$

Dieser modulierte Strom kann von der Stromschwankung des Schroteffektes gerade noch unterschieden werden, wenn

$$J_{\text{sig}} \geq J_{\text{schr}}$$

ist; also für das Gleichheitszeichen und für die Quadratwerte

$$S^2 N R_K = 2 e I \Delta f.$$

Die Minimalempfangsleistung ist danach

$$N = \frac{2 e I \Delta f}{S^2 R_K}.$$

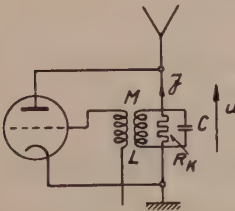


Fig. 6a.

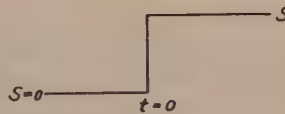


Fig. 6b.

Diese werde aber pro Hertz Bandbreite und in Einheiten  $kT$  ausgedrückt (wo  $k$  die BOLTMANNsche Konstante und  $T$  jetzt die absolute Temperatur bedeutet), so dass

$$\frac{N}{k T \Delta f} = \frac{2 e}{k T} \frac{I}{S} \frac{1}{S R_K}$$

$$\left( \text{bei } T = 300^\circ \text{ abs. ist } \frac{2 e}{k T} = 80 \text{ amp sek} \right).$$



Für eine gute Triode mit einem Anodenstrom  $I = 5$  mA einer Steilheit  $S = 5$  mA/V und einem Eingangswiderstand von  $60 \text{ k}\Omega$  erhält man für

$$\frac{N}{\Delta f} = 0,26 \cdot 4 \cdot 10^{-21} \text{ Watt-sek}$$

als günstigsten Wert. In Überlagerungsschaltung mit einer viel kleineren Mischsteilheit werden die Werte bis  $100 \text{ kT}$ .

Für die Triode in Pendelrückkoppelungsschaltung<sup>4)</sup> betrachten wir im Hinblick auf den Resonator der hochgeteilten Magnetfeldröhre die Antennenankoppelung auf den Anodenschwingkreis Fig. 6a, welcher auch die Rückkoppelung enthält. Die Pendelspannung (hier nicht eingezeichnet) bewirke den sprunghaften Anstieg der Steilheit vom Wert 0 auf den Wert  $S$ , Fig. 6b. Dann ist zur Zeit  $t < 0$  der Strom im Schwingkreis nach KIRCHTOFF bestimmt durch

$$\int \frac{u}{L} dt + C \frac{du}{dt} + \frac{u}{R_K} = J_{\text{sig}} e^{i\omega t} \quad (15)$$

wo  $J_{\text{sig}} e^{i\omega t}$  den von der Antennenleistung eingepprägten Strom bedeutet. Als Lösung ist nur die inhomogene von Interesse, weil die homogene im gedämpften Fall rasch abklingt. Nach nochmaliger Differentiation von (15)

$$\frac{d^2 u}{dt^2} + \frac{1}{R_K C} \frac{du}{dt} + \frac{u}{LC} = i \frac{\omega}{C} J_{\text{sig}} e^{i\omega t}$$

findet man mit dem Lösungsansatz

$$u = A_d e^{i\omega t}$$

für den Effektivwert  $A_d^{\text{eff}}$  im gedämpften Zustand ( $t < 0$ )

$$A_d^{\text{eff}} = \frac{-i \frac{\omega}{C} \frac{J_{\text{sig}}}{\sqrt{2}}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i \frac{\omega}{R_K C}}, \quad \omega_0 = \frac{1}{\sqrt{LC}}.$$

Für die Resonanznähe ergibt sich daraus mit  $N = R_K \frac{J_{\text{sig}}^2}{2}$

$$u_{\text{eff}} = A_d = \sqrt{R_K N}$$

wie es sein muss.

Für  $t > 0$  hat man zu bedenken, dass die eingeprägte Kraft durch die Rückkopplung schon am Gitter sitzt und den Röhrenstrom primär beeinflusst. Es ist dann:

$$\begin{aligned} J &= S(u_g + u_{\text{sig}} e^{i\omega t}) = \\ &= -SM \frac{dJ_L}{dt} + S u_{\text{sig}} e^{i\omega t} = -SM \frac{u}{L} + S u_{\text{sig}} e^{i\omega t}. \end{aligned}$$

Mit dem KIRCHSTOFFSchen Verzweigungsgesetz erhält man wie für  $t < 0$  die inhomogene Differentialgleichung

$$\frac{d^2 u}{dt^2} + \left( \frac{1}{R_K C} + \frac{SM}{LC} \right) \frac{du}{dt} + \frac{u}{LC} = i\omega \frac{S}{C} u_{\text{sig}} e^{i\omega t}.$$

Wegen der Entdämpfung müssen in diesem Fall sowohl die inhomogene als die homogene Lösung betrachtet werden.

Für die inhomogene Lösung

$$u = A_a e^{i\omega t}$$

erhält man für  $A_a$

$$A_a = \frac{i\omega \frac{S}{C} u_{\text{sig}}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega \left( \frac{1}{R_K C} + \frac{SM}{LC} \right)}$$

für die homogene Lösung ergibt sich

$$u = B e^{et} = B e^{-\frac{1}{2} \left( \frac{1}{R_K C} + \frac{SM}{LC} \right) t} \cdot e^{i\omega_0 t}. \quad (16)$$

Der Anfangswert  $B$  bestimmt sich aus der Stetigkeitsforderung zur Zeit  $t = 0^4$ )

$$A_d = A_a + B$$

oder

$$B = A_d - A_a = \frac{i\omega \frac{S}{C} J_{\text{sig}}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega \frac{1}{R_K C}} - \frac{i\omega \frac{S}{C} u_{\text{sig}}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i\omega \left( \frac{1}{R_K C} + \frac{SM}{LC} \right)}.$$

Die Fig. 7 veranschaulicht diese Verhältnisse.

Hier erkennt man auch, dass bei günstiger Wahl der Entdämpfung ( $-M$ ) und genauer Abstimmung der Resonanznenner des zweiten Summanden viel kleiner als derjenige des ersten Summanden gemacht werden kann, so dass

$$B_{\text{sig}} \approx \frac{-i \frac{\omega}{C} S u_{\text{sig}}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i \omega \left( \frac{1}{R_K C} + \frac{SM}{LC} \right)}$$

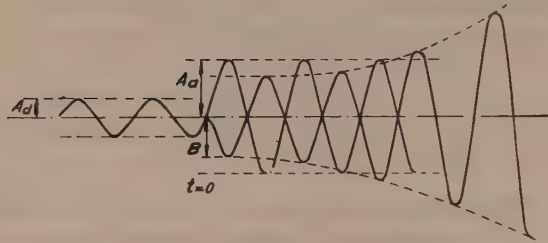


Fig. 7.

$B$  ist also ungefähr gleich der inhomogenen (stationären) Lösung im entdämpften Fall. Die Einstellung eines kleinen Resonanznenners durch geeignete Wahl der Kreisgrößen bedingt zugleich den langsamsten Exponentialanstieg der Kreisspannung nach 16) und damit die grösste Differenzierung der Eingangssignale im Hinblick auf die nachfolgende Demodulation; denn für letztere ist die Zeitdauer bis zur Erreichung der Sättigungsamplitude bestimmend, und die Unterschiede sind um so grösser, je langsamer der Anstieg ist.

Wird nun für den Effektivwert von  $u_{\text{sig}}$

$$u_{\text{sig}}^{\text{eff}} = \sqrt{N R_K}$$

gesetzt, was durch geeignete Wahl der Kopplung  $M$  möglich ist, so folgt für den Effektivwert von  $B_{\text{sig}}$

$$B_{\text{sig}}^{\text{eff}} = - \frac{i \frac{\omega}{C} S \sqrt{N R_K}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i \omega \left( \frac{1}{R_K C} + \frac{SM}{LC} \right)}.$$

Dieser Anfangswert ist mit dem durch den Schrotstrom hervor-

gerufenen Anfangswert  $B_{\text{schr}}$  zu vergleichen, der jetzt die Rolle der eingepprägten Kraft übernimmt. Der Röhrenstrom ist dann:

$$J = S u_g + J_{\text{schr}} = S u_g + \sqrt{2 e I \Delta f}$$

und man erhält auf dieselbe Weise wie vorhin

$$B_{\text{schr}} = - \frac{i \frac{\omega}{C} \sqrt{2 e I \Delta f}}{\omega_0^2 - \omega^2 + i \omega \left( \frac{1}{R_K C} + \frac{SM}{LC} \right)}.$$

Die Bandbreite ist durch den Resonanznenner im Moment der Entdämpfung bestimmt.

Die minimale Empfangsbedingung verlangt wieder

$$B_{\text{sig}} \geq B_{\text{schr}}$$

oder

$$S \sqrt{N R_K} = \sqrt{2 e I \Delta f}. \quad (17)$$

Diese Bedingung ist also ganz unabhängig von der Schaltung, insbesondere vom speziellen Rückkopplungsmechanismus. In denselben Einheiten wie früher wird die Minimaempfangsleistung pro Hertz Bandbreite

$$\frac{N}{k T \Delta f} = \frac{2 e}{k T} \frac{I}{S} \frac{1}{S R_K}$$

also genau derselbe Wert wie bei Gradausverstärkung.

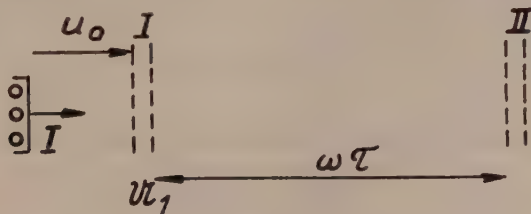


Fig. 8.

§ 4. Als erstes Beispiel der Empfindlichkeitsberechnung von Laufzeitröhren betrachten wir das Klystron. Fig. 8.

Der Schrotstrom am Auskoppler II setzt sich aus zwei Teilen, die in bestimmter Phasenbeziehung zueinander stehen, zusammen: dem primären und dem induzierten Schrotstrom.

$$\mathfrak{J}_{\text{schr}}^{\text{II}} = \mathfrak{J}_{\text{schr}}^{\text{I}} \cdot e^{-i \omega \tau} \cdot e^{i \omega t} + i S u_{\text{schr}}^{\text{I}} e^{-i \omega \tau} \cdot e^{i \omega t}$$



Beide Teile sind mit dem Laufwinkel  $\omega\tau$  auf die Eintrittsstelle  $I$  bezogen.  $\mathfrak{U}_{\text{schr}}^I$  ist die durch den primären Schrotstrom am Eingangskreis  $I$  induzierte Spannung, welche bei kleinem Laufwinkel im Doppelgitter

$$\mathfrak{U}_{\text{schr}}^I = \mathfrak{Z}_{\text{schr}}^I \cdot \mathfrak{R}^I$$

ist. Der Eingangswiderstand  $\mathfrak{R}^I$  sei komplex angenommen. Die kleine induzierte Spannung erzeugt durch Geschwindigkeitsmodulation über die Laufzeit-Steilheit

$$S = \frac{I \omega \tau}{2 U_0} \quad U_0 = \text{Beschleunigungsspannung}$$

an  $II$  in bekannter Weise durch Phasenfokussierung nach Grösse und Phase die Dichtemodulation<sup>5)</sup>

$$i \frac{I \omega \tau}{2 U_0} \mathfrak{Z}_{\text{schrot}}^I \cdot \mathfrak{R}^I \cdot e^{-i \omega \tau}.$$

Die Dichtemodulation auf den Schrotstrom ergibt einen Effekt zweiter Ordnung und werde vernachlässigt. Also wird

$$\mathfrak{Z}_{\text{schr}}^{II} = \mathfrak{Z}_{\text{schr}}^I \left( 1 + i \frac{I \omega \tau}{2 U_0} \mathfrak{R}^I \right) e^{-i \omega \tau}.$$

Andererseits gibt die Empfangsleistung am Realteil von  $\mathfrak{R}^I$  die Signalspannung

$$\mathfrak{U}_{\text{sig}}^I = \sqrt{N R_K}$$

welche über die Steilheit  $S$  an  $II$  den dichtemodulierten Signalstrom liefert

$$\mathfrak{Z}_{\text{sig}}^{II} = i \frac{I \omega \tau}{2 U_0} \sqrt{N R_K} e^{-i \omega \tau}.$$

Die Empfangsbedingung lautet nun wieder (für die Absolutquadrate)

$$|\mathfrak{Z}_{\text{sig}}^{II}|^2 = |\mathfrak{Z}_{\text{schr}}^{II}|^2$$

oder

$$\left( \frac{I \omega \tau}{2 U_0} \right)^2 N R_K = |\mathfrak{Z}_{\text{schr}}^I|^2 \cdot \left| 1 + i \frac{I \omega \tau}{2 U_0} \mathfrak{R}^I \right|^2 \quad (18)$$

und wenn  $\mathfrak{R}^I = R_K + i R_1$  gesetzt und nach  $N$  aufgelöst wird,

$$N = \frac{|\mathfrak{Z}_{\text{schr}}^I|^2}{R_K} \left| \frac{2 U_0}{I \omega \tau} - R_1 + i R_K \right|^2.$$

Durch Wahl des imaginären Teils von  $\Re^I$  (Verstimmung des Eingangskreises)

$$R_1 = \frac{2 U_0}{I \omega \tau}$$

kann der primäre Schroteffekt kompensiert werden, und man erhält mit

$$\left| \Im_{\text{schr}}^I \right|^2 = 2 e I \Delta f$$

(hier ist  $m = 1$ , da die Elektronen die Influenzelektroden nur einmal passieren) für die Empfindlichkeit pro Hertz Bandbreite

$$\frac{N}{kT \Delta f} = \frac{2 e}{kT} I R_K \quad (19)$$

einen von der Steilheit, d. h. dem Laufwinkel unabhängigen Wert. Wird der induzierte Schroteffekt nicht berücksichtigt, so erhält man statt dessen mit  $\Re^I = R_K$

$$\frac{N}{kT \Delta f} = \frac{2 e}{kT} \frac{I}{\left( \frac{I \omega \tau}{2 U_0} \right)^2} \frac{1}{R_K} = \frac{2 e}{kT} \frac{I}{S} \frac{1}{S R_K} \quad (20)$$

also genau den Wert von J. MÜLLER<sup>6)</sup>, der hier (die Bemerkung sei gestattet) in durchsichtigerer Weise abgeleitet ist. Hierbei ist allerdings zu bemerken, dass MÜLLER diesen Wert für die Kompensation des induzierten Schroteffektes angibt. Doch kann dies sicher nicht stimmen, da mit dem Imaginärteil von  $\Re^I$  in (18) nur der Realteil der Klammer, d. h. der primäre Schroteffekt kompensiert werden kann. Das ist auch physikalisch einleuchtend: Man kann den induzierten Effekt nicht durch sich selbst kompensieren. Der Fehler bei MÜLLER rührt meines Erachtens daher, dass seine Rechnung zwischen Schrotstrom und Signalstrom, d. h. zwischen rechts und links eine Phasenbeziehung voraussetzt; eine solche kann aber nur in der rechten Seite allein zwischen primärem und induziertem Schroteffekt bestehen. Mit realisierbaren Grössen erkennt man aus (18), dass der induzierte Schroteffekt viel grösser als der primäre ist, so dass man direkt auf (19) geführt wird.

Zur Empfindlichkeitsberechnung der Magnetfeldröhre mit hochgeteilter Anode als Empfänger ist folgendes vorzuschicken. Weil hier Eingang und Ausgang nicht getrennt sind, kann diese Laufzeitröhre nur in Pendelrückkopplungsschaltung benützt werden. Wesentlich ist, dass der Anodenstrom im Schwingungs-

zustand bei gleicher Anodenspannung grösser als im nicht schwingenden ist. Weil im schwingenden Zustand die Elektronen durch das Tangentialfeld zwischen den Segmenten unter gleichzeitiger Einwirkung des axialen Magnetfeldes radial auf die Anode befördert werden, ist diese Voraussetzung erfüllt<sup>7)</sup>. Sie wurde an den von uns entwickelten Magnetfeldröhren mehrfach experimentell bestätigt; der Unterschied im Anodengleichstrom kann mehr als 50% ausmachen.

Da nach § 3, Gleichung (17) die Empfangsbedingung unabhängig von der speziellen Schaltung und dem Rückkopplungsmechanismus ist, und weiter nach § 4, Gleichung (20) die Empfindlichkeitsgleichung für den Laufzeittyp formal mit demjenigen in gewöhnlichen Röhren übereinstimmt, so kann die Gleichung (17) auf die Magnetfeldröhre in Pendelrückkopplungsschaltung übertragen werden. Es gilt für die Steilheit  $S$  der gleiche Ausdruck wie für das Klystron<sup>7)</sup>, aber mit dem  $m^2$  verstärkten Schroteffekt, weil die Pendelrückkopplungsschaltung eine Hochfrequenzverstärkung ist, also

$$S^2 N R_K = 2 e I \Delta f m^2.$$

Wird für  $S = \frac{I \omega \tau}{2 U_0}$  und für die Laufzeit  $\tau = m T_0 = \frac{2 \pi}{\omega_0}$  gesetzt (die Zeit vom Start bis zum Abgang an der Anode), so kommt

$$\frac{N}{k T \Delta f} = \frac{2 e}{k T} \frac{U_0^2}{I \pi^2 \left( \frac{\omega}{\omega_0} \right) R_K} \quad (21)$$

$m$  fällt heraus, die Empfindlichkeit ist neben  $I$  und  $R_K$  im wesentlichen durch die Steilheit pro Rollkreisperiode (ungefähr gleich Segmentperiode) bestimmt

$$S = \frac{I 2 \pi \omega}{2 U_0 \omega_0}.$$

Der Mechanismus unterscheidet sich insofern zum Klystron, als die Elektronen nach Passieren der Geschwindigkeitssteuerspannung nicht sich selbst überlassen werden, sondern dauernd durch die Wechselfelder zwischen den Segmenten weiter beeinflusst werden; deshalb war die Berechnung des induzierten Schroteffektes nicht in derselben Weise wie dort durchzuführen.

Es ist aber hervorzuheben, dass in beiden Fällen, Gleichung (19) und (21), eine Grenzemfindlichkeit erreicht wird, die durch konstruktive Massnahmen kaum zu erhöhen ist.

Wenn somit die Magnetfeldröhre in Pendelrückkopplungsschaltung als Eingangsverstärker wegen viel zu kleiner Empfindlichkeit prinzipiell ungeeignet ist (vgl. die numerische Ausrechnung am Schluss), so ist sie dies noch aus einem andern Grund. Nach Gleichung (16) kann die Zeitkonstante des Ansschwingvorganges

$$t_a = \frac{2}{\frac{SM}{LC} - \frac{1}{R_K C}}$$

mit der Resonatorfrequenz  $\omega_r = \frac{1}{LC}$  und dem Gütefaktor  $Q = \frac{R_p}{\omega_r L}$  geschrieben werden

$$t_a = \frac{2}{\alpha \omega_r} \quad \text{mit} \quad \alpha = SM \omega_r - \frac{1}{Q}$$

wo  $\alpha$  eine dimensionslose Zahl ist; bei gleichem  $\alpha$  ist die Zeitkonstante für verschiedene Sender umgekehrt proportional  $\omega_r$ , d. h. die Zunahme der Hochfrequenzamplitude auf einen bestimmten Wert umfasst gleich viele Perioden. Für die Frequenzen der Mikrowellen wird also ein besonders rasches Anschwingen zu erwarten sein. Der Gütefaktor  $Q$  und die Rückkopplung  $M$  können etwa gleich wie im Langwellengebiet angenommen werden. Die Steilheit  $S = \frac{I \omega_r \tau}{2 U_0}$  geht hier mit dem vollen Laufwinkel  $\omega_r \tau$  ein und kann grössere Werte als bei Trioden erreichen, so dass  $t_a$  noch mehr als proportional mit  $\omega_r$  kleiner wird. In Übereinstimmung damit zeigte die Analyse im Kathodenstrahloszillograph bei Impulstastung unserer Magnetfeldröhre („des Turbators“), dass die Hochfrequenzspannung der Impulsspannung ohne Verzögerung folgt, trotzdem die Zeit des Impulsanstieges kleiner als 0,1 Mikros. ist. Aus diesem Grunde ist eine nachfolgende Detektion bei Pendelrückkopplung unwirksam, weil ja die Zeitkonstante wie vorher ausgeführt für diesen Zweck möglichst gross sein sollte. Bei der Magnetfeldröhre liesse sich  $\alpha$  nur über  $Q$  (Dämpfung) verkleinern, was aber in der Ausführung Schwierigkeiten bereitet; der Generator reisst dann eher ab. Es sei aber an dieser Stelle betont, dass sich dieser Nachteil der kleinen Zeitkonstante für andere Zwecke (Impulsmodulation) in einen besondern Vorteil verwandelt; darauf wird in anderem Zusammenhang näher eingegangen<sup>10)</sup>.

Schliesslich werde noch die Empfindlichkeit des Umlaufresonanzverfahrens nach dieser Methode berechnet. Dieses Ver-



fahren beruht darauf, dass in einer Zweischlitzmagnetfeldröhre mit sehr kleinem Anodendurchmesser das Magnetfeld, d. h. die Rollkreisfrequenz, auf die zu empfangende Frequenz abgestimmt ist; die von der Antenne an den Anodensegmenten erzeugte Wechselspannung bewirkt dann durch Umlaufresonanz einen Richteffekt. Eine Anodenspannung von einigen Volt genügt, um die

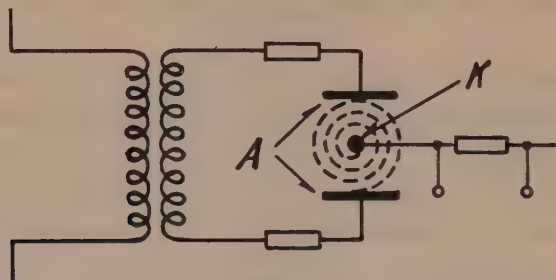


Fig. 9.

Reizschwelle des Empfangs zu beseitigen. Statt mit dieser ist es zweckmässig, den Empfang nach dem Überlagerungsprinzip und mit nachfolgender Zwischenfrequenzverstärkung zu bewerkstelligen. Die Reizschwelle wird dann durch die überlagerte Wechselspannung beseitigt. Der Hauptvorteil dieses von H. JUNGFER ausführlich beschriebenen Empfangs<sup>8)</sup> gegenüber Bremsfeld oder Magnetfeldröhren mit Anodenspannung liegt in der grossen Stabilität; denn es ist immer sehr schwierig, die Anodenspannung, von welcher im wesentlichen die Richtteilheit abhängt, genau einzustellen. Rückheizungseffekte und Schrägstellung im Magnetfeld erhöhen diese Schwierigkeiten noch. Jedoch besteht prinzipiell für die Empfangsempfindlichkeit kein Unterschied zwischen diesen verschiedenen Verfahren, und die Berechnung gilt für alle Typen in gleicher Weise.

Man bekommt durch dieselbe Überlegung wie in den vorigen Fällen nach den Bemerkungen über den Schroteffekt in § 2

$$\frac{N}{kT \Delta f} = \frac{2e}{kT} \frac{Im^2}{S^2 R_K}$$

für Hochfrequenzverstärkung und

$$\frac{N}{kT \Delta f} = \frac{2e}{kT} \frac{I}{S^2 R_K}$$

für Nieder- und Zwischenfrequenzverstärkung.

Hierbei ist  $S$  durch die Richtsteilheit bestimmt, welche wesentlich von der genauen Konstruktion abhängt.

Für die Diode mit Überlagerungsempfang gilt dieselbe Gleichung; die Unterschiede sind hauptsächlich durch die verschiedenen Steilheiten bedingt.

Wir geben zum Schluss noch eine Zusammenstellung von Empfindlichkeiten, wie sie sich nach den angegebenen Gleichungen für verschiedene Fälle berechnen lassen.

Triode, Gradaus- oder Pendelrückkopplungsschaltung

$$\frac{N}{\Delta f} = \frac{2e}{kT} \frac{I}{S^2 R_K} kT = 1,8 \text{ kT}$$

$$I = 10 \text{ mA} \quad S = 5 \text{ mA/V} \quad R_K = 20 \text{ k}\Omega.$$

Klystron (Hochfrequenz-Eingangsverstärker)

$$\frac{N}{\Delta f} = \frac{2e}{kT} I R_K kT = 1600 \text{ kT}$$

$$I = 10 \text{ mA} \quad R_K = 20 \text{ k}\Omega.$$

Magnetfeldröhre (mit hochgeteilter Anode) in Pendelrückkopplungsschaltung

$$\frac{N}{\Delta f} = \frac{2e}{kT} \frac{U_0^2}{I \pi^2 \left( \frac{\omega_r}{\omega_0} \right)^2 R_K} kT = 1100 \text{ kT}$$

$$U_0 = 500 \text{ V} \quad I = 10 \text{ mA} \quad \frac{\omega_r}{\omega_0} = 3 \quad R_K = 17 \text{ k}\Omega.$$

Überlagerungsempfang (Umlaufresonanzverfahren)

$$\frac{N}{\Delta f} = \frac{2e}{kT} \frac{I}{S^2 R_K} kT = 60 \text{ kT}$$

$$I = 10 \text{ }\mu\text{A} \quad S_c = 30 \text{ }\mu\text{A/V} \quad R_K = 15 \text{ k}\Omega.$$

Die  $17 \text{ k}\Omega$  für den Magnetfeldgenerator wurden vom Verfasser in anderem Zusammenhang berechnet<sup>9</sup>); die Werte für  $I$  und für die Mischsteilheit  $S_c$  beim Umlaufresonanzverfahren sind der Arbeit von JUNGFER entnommen.

Der Vergleich zeigt, dass eine Laufzeitröhre (infolge der relativ kleinen Fokussierungssteilheit) wenig Aussicht als Hochfrequenzverstärker hat, und dass der Überlagerungsempfang, bei dem als Mischelement neben Diode, Bremsfeldröhre usw. prinzi-

piell auch der Kristalldetektor verwendet werden kann, weitaus am günstigsten erscheint. Direkte Gleichrichtung am hochfrequenten Eingang und nachfolgende Niederfrequenzverstärkung kommt wegen der zu kleinen Krümmung der Kennlinie bei kleinen Signalen nicht in Betracht.

Abschliessend danke ich Herrn W. FREY für vielfache Diskussionen über die prinzipielle Seite des Problems und Herrn J. SCHWARTZ für die Besprechung der Eigenschaften einzelner Schaltungen.

#### Literatur.

- <sup>1)</sup> W. SCHOTTKY, Ann. d. Phys. **57** (1918), 541; Ann. d. Phys. **68** (1932), 157.
- <sup>2)</sup> W. SCHOTTKY, Zeitschr. f. Phys. **104** (1937), 248.
- <sup>3)</sup> F. SPENKE, Wiss. Veröffentl. Siemens-Konzern **16** (1937), 127. Siehe auch ROTHE und KLEEN, Elektronenröhren als Anfangsverstärker Bd. 3.
- <sup>4)</sup> H. O. ROSENSTEIN, Hochfreq. u. El. Akust. **42** (1933), 85.
- <sup>5)</sup> W. C. HAHN und C. F. METCALF, Proc. Inst. Radio. Eng. **27** (1939), 106; F. LÜDI, HPA. Vol. XIII, Fasc. Sec. (1940), 122, Gleichung 18.
- <sup>6)</sup> JOHANNES MÜLLER, Hochfreq. u. El. Akust. **60** (1942), 19.
- <sup>7)</sup> F. LÜDI, HPA. Vol. XVI, Fasc. Prim. (1943), 59.
- <sup>8)</sup> H. JUNGFER, Hochfreq. u. El. Akust. **61** (1943), 172.
- <sup>9)</sup> F. LÜDI, HPA. Vol. XVII, Fasc. Sext. (1944), 429.
- <sup>10)</sup> H. J. v. BAEYER, Brown Boveri Mitteilungen, Sonderheft für Hochfrequenztechnik. August 1946.

# Zur Absorptionsmethode der Bestimmung von $\beta$ - und $\gamma$ -Energien

von E. Bleuler und W. Züntli.

(12. VI. 1946).

*Zusammenfassung.* Eine verbesserte Methode der Auswertung von Absorptionsmessungen wird entwickelt. Der Verlauf der Absorptionskurven für erlaubte  $\beta$ -Spektren wird halbempirisch berechnet und die Energie eines unbekannten Spektrums durch Vergleich der Absorptionskurve mit diesen Normalkurven bestimmt. Eine Durchsicht der Literatur zeigt die Brauchbarkeit der Methode. Zugleich werden für eine Reihe von publizierten Zerfallsenergien neue Werte angegeben.

In ähnlicher Weise können die Absorptionskurven der Sekundärelektronen von  $\gamma$ -Strahlen zwecks Bestimmung der Quantenenergie ausgewertet werden. Die  $\gamma$ -Empfindlichkeit von Zählrohren wird angenähert berechnet; die Resultate sind in guter Übereinstimmung mit den experimentellen Werten, während sich die Formel von v. DROSTE als unzulänglich erweist.

## Einleitung.

Die genauesten Messungen von  $\beta$ - und  $\gamma$ -Energien erfolgen mit Hilfe des magnetischen Spektrographen. Dieser verlangt jedoch eine grosse Präparatstärke bei kleiner Quelle und nicht zu kurzer Halbwertszeit. Auch die Messung mit Hilfe der Wilsonkammer erfordert ziemlich starke Präparate, ist ausserdem sehr langwierig und mit nicht zu unterschätzenden Fehlerquellen behaftet. Als zweckmässigste und einfachste Methode ist daher in manchen Fällen die Untersuchung der Absorption der  $\beta$ -Spektren und der Sekundärelektronen der  $\gamma$ -Strahlung angezeigt. Ihre Schwäche liegt in der Unsicherheit der Auswertung der Absorptionskurven.

## I. Kontinuierliche $\beta$ -Spektren.

### 1. Vergleichsmethode von Feather.

Die übliche Auswertemethode der Absorptionskurven beruht auf der Bestimmung der Reichweite, d. h. derjenigen minimalen Absorberdicke, welche sämtliche Elektronen absorbiert. Nach unsern Messungen<sup>1)</sup> ist ihr Zusammenhang mit der Maximalenergie  $E_0$  des  $\beta$ -Spektrums für  $E_0 > 1$  MeV durch die Beziehung

$$R \text{ (gr/cm}^2\text{)} = 0,571 E_0 \text{ (MeV)} - 0,161$$

gegeben, welche etwas von der Formel von FEATHER<sup>2)</sup> abweicht.



Bei schwächeren Präparaten oder bei Auftreten von  $\gamma$ -Strahlung ist es nicht möglich, die Absorptionskurve genügend weit zu verfolgen, um die Reichweite direkt zu bestimmen. FEATHER<sup>2)</sup> hat daher vorgeschlagen, sie durch Vergleich der Absorptionskurve mit derjenigen einer Eichsubstanz (RaE) zu berechnen: Die Reichweite  $R^0$  von RaE wird in 10 gleiche Intervalle geteilt. Die Intensität in den Punkten  $d_n^0 = \frac{n}{10} R^0$  sei  $I_n^0$ . Aus der auszuwertenden Absorptionskurve werden diejenigen Absorberdicken  $d_n$  abgelesen, welche die Intensität auf den gleichen Bruchteil  $I_n = I_n^0$  herabsetzen. Das Verhältnis  $d_n/d_n^0$  wird einem angenäherten Reichweitenverhältnis  $R_n/R^0$  gleichgesetzt, welches mit wachsendem  $n$  gegen das wahre Verhältnis der Reichweiten  $R/R^0$  strebt. Dieses Verfahren wäre ideal, wenn die Absorptionskurven verschiedener Spektren zueinander affin wären, d. h. durch einfache Dehnung der Abszisse auseinander hervorgingen. In diesem Falle wären alle  $R_n = R^0$ . Leider sind die wirklichen Verhältnisse ganz anders. In

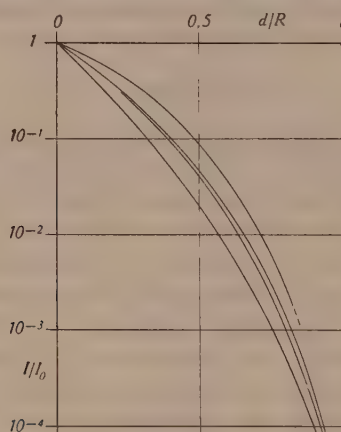


Fig. 1.

Absorptionskurven, bezogen auf gleiche Reichweite  $I/I_0 = f(d/R)$ .

Reihenfolge von links nach rechts: RaE,  $UX_2$ ,  $P^{32}$ ,  $Cl_I^{38}$ .

Fig. 1 sind die Absorptionskurven von RaE,  $UX_2$ ,  $P^{32}$  und dem energiereichsten Teilspektrum von  $Cl^{38}$  (bezeichnet mit  $Cl_I^{38}$ , vgl.<sup>1)</sup>), reduziert auf gleiche Reichweite, dargestellt. Zwei Tatsachen sind offensichtlich:

1. Die Absorptionskurve von RaE verläuft viel flacher als die der andern Spektren. Dies ist eine Folge des bekannten Überschusses an langsamen Elektronen. Die  $R_n$ -Werte nehmen daher stark ab.

Tabelle 1.

 $R_n/R$ .

$n$	1	2	3	4	5	6	7	8	9	$E_0$ (MeV)
$P^{32}$	1,45	1,30	1,26	1,22	1,18	1,15	1,11	1,07	1,04	1,72
$UX_2$	1,44	1,29	1,25	1,19	1,15	1,11	1,08	1,05	1,03	2,32
$Cl_1^{38}$	2,00	1,74	1,56	1,41	1,32	1,24	1,15	1,11	—	4,96

Offenbar wäre es bereits eine wesentliche Verbesserung, z. B.  $P^{32}$  als Eichsubstanz zu wählen.

2. Abgesehen von der Anomalie des RaE zeigt ein Vergleich von  $P^{32}$  und  $UX_2$  mit  $Cl_1^{38}$  eine starke Abhängigkeit der Kurvenform von der Energie, indem die Krümmung mit steigender Energie zunimmt. Dies ist aus der Form der Energie-Reichweite-Beziehung verständlich: Da die Reichweite bei kleinen Energien sehr langsam ansteigt (s. Fig. 3), werden die energiearmen Teile des  $\beta$ -Spektrums bei kleiner Maximalenergie verhältnismässig rascher absorbiert als bei grosser Maximalenergie, so dass die Absorptionskurve schon bei kleinen Absorberdicken steil abfällt. Diese Tendenz wird durch die Form der Spektren unterstützt, indem das Verhältnis der mittlern zur maximalen Energie mit der letzteren abnimmt (Fig. 2, gestrichelte Kurven). Aus dem gleichen Grunde ist auch eine Abhängigkeit der Kurvenform von der Kernladung zu erwarten: Je grösser die Kernladung, umso mehr verschiebt sich das Maximum des  $\beta$ -Spektrums nach kleinern Energien, umso steiler wird daher die Absorptionskurve. (Fig. 2, Kurven a, b, c. Berechnung s. Anhang 2). Schliesslich spielt auch der Charakter des Überganges eine Rolle: Bei den wenigen bisher genau untersuchten verbotenen Spektren hat sich fast immer ein Überschuss an langsamen Elektronen (sehr stark bei RaE, schwächer bei  $P^{32}$ ,  $Cl_1^{38}$ , vermutlich auch  $Na^{24}$ ), nie ein solcher an schnellen gezeigt. Es ist daher möglicherweise bei verbotenen Spektren zum vornherein mit etwas grösserer Anfangsneigung der Absorptionskurve zu rechnen; nach den bisherigen Erfahrungen scheint es aber, dass dieser Einfluss gegenüber den vorher erwähnten im allgemeinen stark zurücktritt.

Infolge der Abhängigkeit der Absorptionskurven von den verschiedenen Parametern können aus dem Vergleich mit einer einzigen Eichkurve nur unzuverlässige Schlüsse gezogen werden. Folgendes Verfahren dürfte vorzuziehen sein:

Anhand der Absorptionskurve des zu untersuchenden Spektrums werden diejenigen Absorberdicken  $d_n'$  bestimmt, welche die

Intensität auf den  $2^n$ -ten Teil herabsetzen. Aus einer für erlaubte Übergänge berechneten Eichkurvenschar  $d_n' = f(E_0, Z)$  werden Energiewerte  $E_n = E_0(d_n, Z)$  abgelesen, die bei Vorliegen eines einfachen erlaubten Spektrums konstant und gleich der Maximalenergie  $E_0$  sein müssen. Eine Änderung von  $E_n$  deutet auf eine Abweichung in der Form des Spektrums hin. In diesem Falle ist der extrapolierte Grenzwert  $E_\infty$  als Maximalenergie anzunehmen.

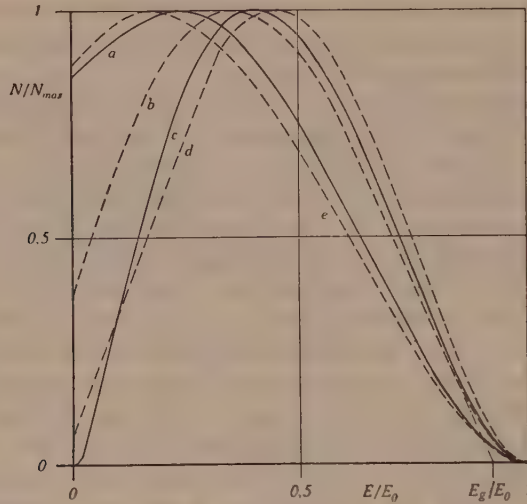


Fig. 2.

Fermispektren.  $N/N_{\max} = f(E/E_0)$

- |  |  |
|--|--|
| $a$ ——— $Z = 90, \beta^-; E_0/mc^2 = 3$  | $b$ ——— $Z = 20, \beta^-; E_0/mc^2 = 3$  |
| $c$ ——— $Z = 40, \beta^+; E_0/mc^2 = 3$  | $d$ ——— $Z = 20, \beta^-; E_0/mc^2 = 10$ |
| $e$ ——— $Z = 20, \beta^-; E_0/mc^2 = 1.$ |  |

Mit  $d'$  möge im folgenden die Dicke der vor das Zählrohr geschalteten Absorberfolien bezeichnet werden. Die gesamte Absorberdicke ist  $d = d' + d_0$ , wobei mit einer effektiven Wandstärke des Zählrohres von  $d_0 = 0,14$  mm Al gerechnet wird (s. Anhang 1). In Abweichung von unserer ersten Mitteilung<sup>1)</sup> ziehen wir nun vor, die Absorptionskurven nicht auf  $d = 0$  zu extrapolieren, sondern nur mit den Werten  $d'$  der Absorber allein zu rechnen. Während ferner in <sup>1)</sup> die Eichkurven  $d_n = f(E_0)$  durch lineare Interpolation zwischen den Werten für  $P^{32}$  und  $Cl^{38}_I$  erhalten wurden, welche beide verbotenen Übergängen entsprechen, sollen sie nun für erlaubte Übergänge und beliebige  $Z$  berechnet werden.

## 2. Berechnung der Eichkurven.

Die rein theoretische Berechnung der Kurven  $d_n' = f(E_0, Z)$  ist ausserordentlich kompliziert und in Strenge kaum durchführbar. Es kann sich nur darum handeln, ein ungefähres Bild der Absorption zu entwerfen, welches gestattet, die kleinen Änderungen zu berechnen, mittels deren man aus den Absorptionskurven der Eichsubstanzen diejenigen der erlaubten Übergänge bei verschiedenen Kernladungen erhält.

Die Absorption von Elektronen einheitlicher Geschwindigkeit ist von MADGWICK<sup>3)</sup>, VARDER<sup>4)</sup> und EDDY<sup>5)</sup> untersucht worden. Da ihre Daten jedoch nur unvollständig angegeben sind, untereinander abweichen und stark von der Geometrie abhängen (s. EDDY), ist eine einfache theoretische Berechnung vorzuziehen, weil sie homogenere Resultate liefert. Nach BOTHE<sup>6)</sup> beruht die Absorption auf einem Zusammenwirken von Zerstreuung und Geschwindigkeitsverlust: Schickt man ein paralleles Bündel von Elektronen einer bestimmten Energie durch einen Absorber der Dicke  $x$ , so wird es infolge der Vielfachstreuung verbreitert. Der wahrscheinlichste Ablenkungswinkel  $\lambda$  steigt zunächst mit  $\sqrt{x}$  an, nähert sich aber bei grössern Schichtdicken einem Endwert  $\lambda_0$  (vollständig diffuse Strahlung). Bei weiterer Absorption ändert sich die Verteilung des Bündels nicht mehr. Für seine Intensität gilt ein Absorptionsgesetz der Form:

$$dN/dx = -\alpha(x) \cdot N,$$

wobei der Absorptionskoeffizient für Al den Wert

$$\alpha(x) = 14,2 \left[ \frac{E + 0,511}{E(E + 1,022)} \right]^2 \text{ cm}^{-1}$$

hat.  $E$  ist die Energie der Elektronen in MeV, nach Durchgang durch die Schicht  $x$ . Unter Vernachlässigung der Streuung des Geschwindigkeitsverlustes kann man eine Beziehung zwischen der Energie und der restlichen Grenzdicke aufstellen (entsprechend der Restreichweite von  $\alpha$ -Strahlen nach Durchgang durch eine Folie), welche man z. B. den Angaben von LENARD<sup>7)</sup> entnehmen kann. Um einen möglichst engen Zusammenhang mit dem Experiment zu bewahren, ziehen wir es jedoch vor, diese Beziehung aus unserer Energie-Reichweite-Kurve zu berechnen, wobei wir annehmen, dass die für ein  $\beta$ -Spektrum der Maximalenergie  $E_0$  gemessene Reichweite der Grenzdicke derjenigen Energie  $E_g$  entspricht, welche durch lineare Extrapolation der Flanke des Spektrums erhalten wird (s. Fig. 2). Es ist nicht anzunehmen, dass die wenigen Elektronen mit Energien zwischen  $E_g$  und  $E_0$  einen merklichen Beitrag zur Ab-



sorptionskurve liefern. Aus Fig. 3 ist ersichtlich, dass die benutzten Werte nur unwesentlich von denjenigen LENARDS abweichen. Zugleich sind die experimentellen Beziehungen zwischen der Maximalenergie von  $\beta$ -Spektren und ihrer Reichweite, sowie zwischen der Energie homogener Elektronen und ihrer praktischen Reichweite dargestellt. Die letztere wird durch lineare Extrapolation der Absorptionskurve erhalten ( $R_p$  in Fig. 4) und ist deshalb bedeutend

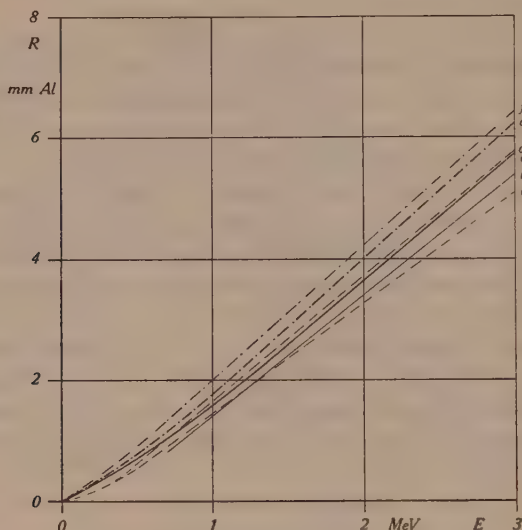


Fig. 3.

Reichweiten.

- $R_p$  = Praktische Reichweite homogener Elektronen, **a** nach VARDER und EDDY, **d** nach MADGWICK.  
 —  $R$  = Reichweite von  $\beta$ -Spektren, **b** nach FEATHER, **c** nach 1).  
 ···  $R_g$  = Grenzdicke homogener Elektronen, **e** aus **c** berechnet, **f** nach LENARD.

kleiner als die Grenzdicke. Die verschiedenen Kurven mögen zeigen, mit welcher Vorsicht Angaben über „Reichweiten“ aufzufassen sind.

Der Absorptionskoeffizient  $\alpha$  kann nun berechnet und die Absorptionskurve für diffuse Strahlung graphisch integriert werden. (Fig. 4, ausgezogene Kurve.) Der Tatsache, dass sich bei kleinen Absorberdicken die Diffusion und damit die Intensitätsverminderung durch Rückdiffusion erst allmählich einstellen, wird durch die für jede Energie gesondert zu zeichnende gestrichelte Anfangsextrapolation Rechnung getragen. Die Verschiebung  $x_0$  ist dabei diejenige Schichtdicke, in der der wahrscheinlichste

Streuwinkel  $\lambda = \text{const.}$   $\sqrt{x}$  auf seinen Endwert  $\lambda_0 = 0,576$  ansteigen würde. Der Charakter dieser Kurven stimmt befriedigend mit dem Experiment<sup>3)4)5)</sup> überein. Auch die Differenz  $R_g - R_p$  (0,5 mm) ist von der Grösse, die auf Grund von Fig. 3 erwartet werden kann.

Die Kenntnis der Absorption homogener Elektronen ermöglicht die Berechnung der Verzerrung, welche ein Spektrum durch die Absorption erfährt und daraus — durch Integration (Planimetrieren) — die Bestimmung der Verminderung der Teilchenzahl. Dies wird für die Fermispektren mit den Maximalenergien 1, 2, 3, 5

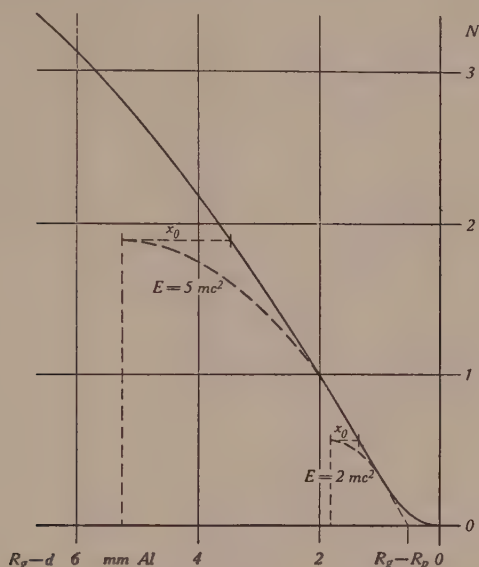


Fig. 4.

Absorption homogener Elektronen [berechnet], Ordinate willkürlich.

und  $10 mc^2$  bei  $Z = 0, 20, 40$  und  $90$ , sowie für Positronenübergang bei  $Z = 40$  durchgeführt. Die so erhaltenen Kurven entsprechen jedoch nicht genau den experimentellen Bedingungen. Die Anpassung erfolgt mit Hilfe der Spektren von  $\text{Cu}^{64}$ ,  $\text{RaE}$ ,  $\text{Cu}^{61}$ ,  $\text{P}^{32}$  und  $\text{Cl}_I^{38}$ .  $\text{Cu}^{64}$  wird nach der Formel für erlaubte Übergänge berechnet, wobei wir auf Grund neuerer Messungen in unserem Institut<sup>8)</sup> 26% Positronen ( $0,645 \text{ MeV}^9$ ) und 74% Elektronen ( $0,576 \text{ MeV}^9$ ) annehmen. Auch das Spektrum von  $\text{Cu}^{61}$  hat die von der Theorie geforderte Form bei einer Maximalenergie von  $1,22_5 \text{ MeV}^{10}$ . Für die übrigen Eichsubstanzen werden die gemessenen Spektren von FLAMMERSFELD<sup>11)</sup>, LAWSON<sup>12)</sup> und WATASE und

Гон<sup>13</sup>) (s. <sup>1</sup>)) benützt. Fig. 5 zeigt die berechneten und die gemessenen Kurven. Die Übereinstimmung ist sehr gut für RaE, Cu<sup>61</sup> und P<sup>32</sup>. Die Abweichungen bei kleinen Energien sind zu erwarten, da hier die Reichweite-Energie-Beziehung unsicher wird und die Streuung der Geschwindigkeitsverluste eine grössere Rolle spielt. Bei hohen Energien ist andererseits die Anfangsextra-

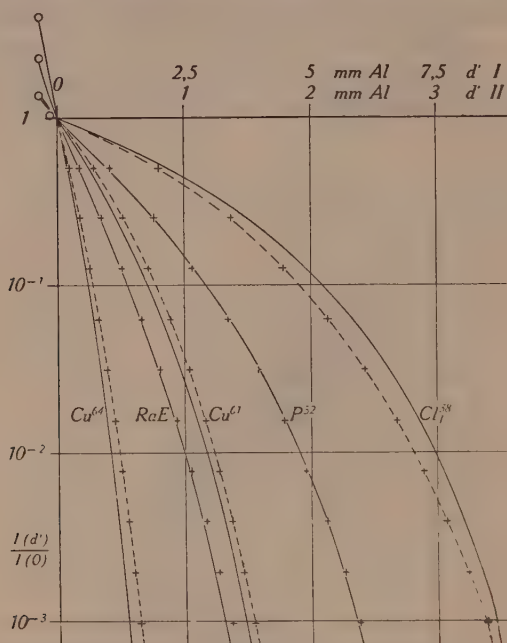


Fig. 5.

Absorptionskurven der Eichsubstanzen.

Abszissenskala I für Cl<sup>38</sup>, II für die übrigen Spektren.

—○— berechnet, mit Extrapolation auf  $d = 0$ . +—+ gemessen.

polation (Fig. 4) ziemlich willkürlich, da sie sich über einen grossen Bereich erstreckt.

Die Korrektur der berechneten Absorptionskurven nach Fig. 5 liefert für die Fermispektren die in Fig. 6 dargestellten Eichkurven  $d_n' = f(H_0)$  für  $Z = 20$ . Diese Kernladung liegt für manche Anwendungen am günstigsten. Die Abweichungen für andere Werte von  $Z$  können der Fig. 7 entnommen werden.

Es versteht sich, dass die Kurven der Fig. 6 in Strenge nur für die verwendete Messanordnung gelten (s. Skizze). Bei andern experimentellen Bedingungen, z. B. bei Verwendung von zylindrischen Absorbern, werden sie etwas abweichen, vor allem für

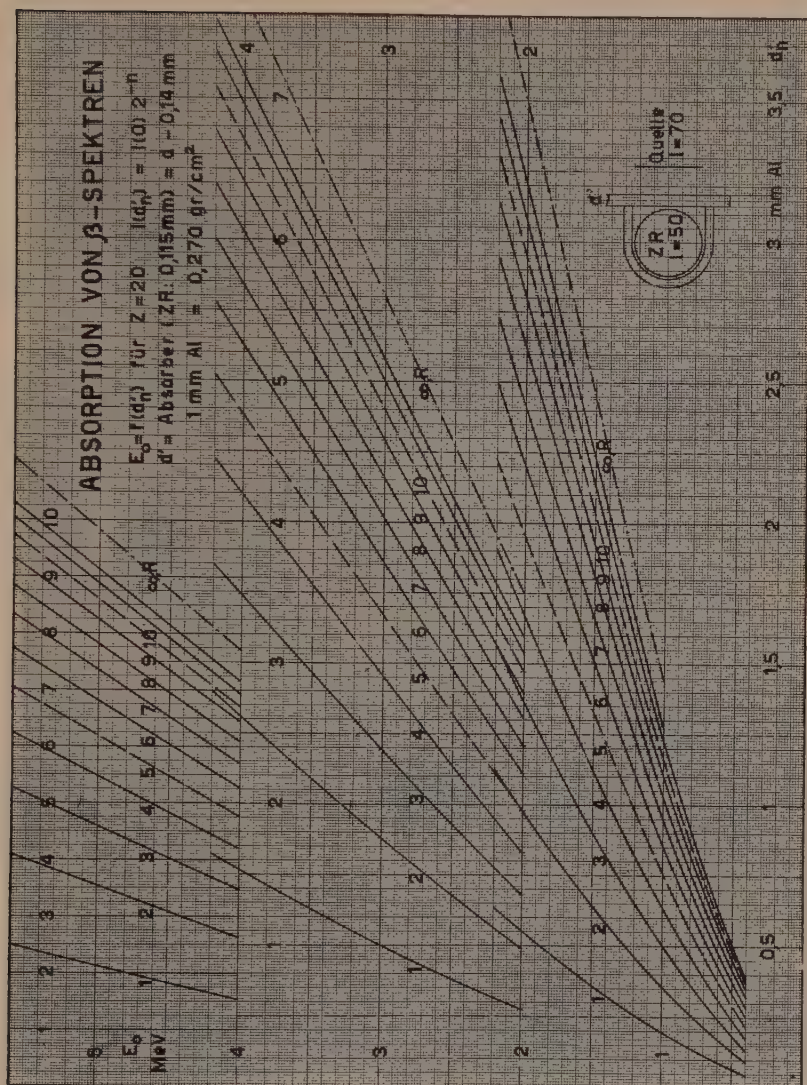


Fig. 6.



kleine  $n$ . Die Kurven  $d_n' = f(E_0)$  für  $Z = 20$  können jedoch mit Hilfe der in Tabelle 2 zusammengestellten  $E_n$ -Werte für jede Anordnung konstruiert werden, für welche die Absorptionskurven der Eichsubstanzen bekannt sind.

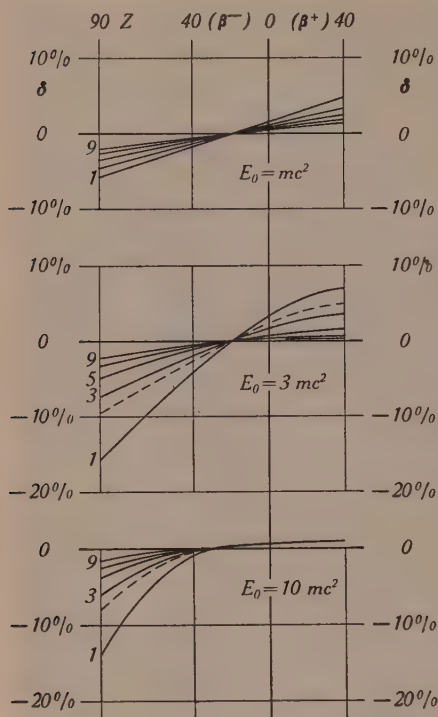


Fig. 7.

Korrekturen für  $Z \neq 20$ .

$$\delta = \frac{d_n'(Z) - d_n'(20)}{d_n'(20)} = f(Z)$$

für  $E_0/mc^2 = 1, 3, 10$ .

Parameter:  $n = 1, (2), 3, 5, 7, 9$ .

Tabelle 2.  
 $E_n$ -Werte der Eichsubstanzen.

$E_0 \backslash n$	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11
Cu <sup>64</sup>	0,62	0,62	0,62	0,62	0,63	0,63	0,63	0,64	0,64	0,64	
RaE 1,17	0,93	0,98	1,01	1,03	1,05	1,07	1,08	1,09	1,11	1,12	1,14
	(1,00	1,04	1,06	1,07	1,08	1,09	1,10	1,11	1,12	1,13	1,15)
Cu <sup>61</sup> 1,22 <sub>5</sub>	1,32	1,29	1,28	1,28	1,26	1,24	1,24	1,23	1,23	1,22	
	(1,22	1,25	1,24	1,25	1,24	1,24	1,23	1,22	1,22	1,22)	
P <sup>32</sup> 1,72	1,65	1,69	1,69	1,71	1,71	1,70	1,70	1,70	1,70	1,70	1,70
UX <sub>2</sub> 2,32	2,06	2,13	2,15	2,18	2,19	2,21	2,22	2,23	2,24		
	(2,35	2,30	2,28	2,28	2,28	2,28	2,28	2,28	2,29)		
Cl <sup>38</sup> <sub>1</sub> 4,96	4,82	4,88	4,90	4,91	4,92	4,93	4,94	4,94	4,95	4,95	4,96

Diese  $E_n$ -Werte erhalten wir also, wenn wir mit den experimentellen  $d_n'$  in die Eichkurvenschar für  $Z = 20$  eingehen. Sie sollten

weitgehend von der Messanordnung unabhängig sein. Für RaE, Cu<sup>61</sup> und UX<sub>2</sub> sind ausserdem in Klammern die für  $Z = 83, -29$  ( $\beta^+$ ) und 91 korrigierten Werte aufgeführt, um die Auswirkung dieser Korrektur zu zeigen. Wenn Messung und Eichkurven fehlerlos wären, müssten natürlich bei Cu<sup>61</sup> alle  $E_n = E_0 = 1,22_5$  sein. Bei UX<sub>2</sub> und RaE ist ein Gang der Werte zu erwarten, da sie keine einfachen erlaubten Spektren haben. Tatsächlich ist bei RaE der Überschuss an langsamen Elektronen erkennbar: die  $E_n$ -werte steigen langsam an. P<sup>32</sup> zeigt nur bei  $E_1$  eine Andeutung davon, ebenso Cl<sup>38</sup> nur bei den ersten Werten.

Die Fehlergrenzen der Eichkurven werden 0,04 MeV für  $E_0 < 1$  MeV, 0,06 bei 2 MeV, 0,1 bei 3 MeV und 0,2 bei 5 MeV nicht übersteigen.

### 3. Komplexe Spektren.

Komplexe Spektren ergeben ansteigende  $E_n$ -werte. Die Grenzenergie kann entweder durch Extrapolation auf  $n = \infty$ , oder aber, mit grösserer Sicherheit, durch Analyse der gemessenen Absorptionskurve in 2 oder mehrere Normalkurven bestimmt werden. Mit diesem Verfahren erhält man zugleich die Energie der Teilspektren und das Verzweigungsverhältnis. Weitere Anhaltspunkte für die Zerlegung ergeben sich aus der Untersuchung der  $\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenzen und aus der Messung der  $\gamma$ -Energie.

### 4. Endliche Präparatdicke.

Falls die Dicke der Quelle gegenüber der Reichweite des Spektrums (schärfer: gegenüber  $d_1'$ ) nicht zu vernachlässigen ist, ändert sich die Form der Absorptionskurve. Wenn  $t$  die Schichtdicke Al mit gleichem Absorptionsvermögen wie die Quelle bedeutet, so ist die bei einem Absorber  $d$  gemessene Intensität

$$I_t(d) = \frac{1}{t} \int_d^{d+t} I_0(a) da \quad (1)$$

( $I_0(d)$  = Absorptionskurve aus dünner Schicht).

Für die Schichtdicke  $t$  kann, in Ermangelung anderer Angaben, nach FOURNIER<sup>14)</sup> der Wert  $t = \frac{\sigma \cdot (105 + Z)}{2,7 \cdot 118}$  angenommen werden, für Wasser:  $t = \sigma \cdot 1,03/2,7$  ( $\sigma$  = Flächendichte in gr/cm<sup>2</sup>). Mit Hilfe von (1) kann, entsprechend dem Vorgehen von FEATHER<sup>2)</sup>, eine Korrekturtabelle für die  $d_n'$  oder für die  $E_n$  aufgestellt werden. Da dieses Verfahren jedoch bei komplexen Spektren versagt,

ziehen wir es vor, aus der gemessenen Kurve  $I_t(d)$  die Absorptionskurve aus dünner Schicht  $I_0(d)$  zu berechnen. Dies geschieht entweder mittels der Differentialform von (1):

$$I_0(d) = I_0(d+t) - t \left. \frac{dI_t(a)}{da} \right|_a \quad (2)$$

oder mit den durch Entwickeln von  $I_0$  gewonnenen Formeln:

$$I_0(d) = I_t(d) - \frac{t}{2} \left. \frac{dI_t(a)}{da} \right|_d + \frac{t^2}{12} \left. \frac{d^2 I_t(a)}{da^2} \right|_d - \frac{t^4}{720} \left. \frac{d^4 I_t(a)}{da^4} \right|_d \quad (3)$$

$$I_0(d) = I_t\left(d - \frac{t}{2}\right) - \frac{t^2}{24} \left. \frac{d^2 I_t(a)}{da^2} \right|_{d-\frac{t}{2}} + \frac{t^4}{823} \left. \frac{d^4 I_t(a)}{da^4} \right|_{d-\frac{t}{2}} \quad (4)$$

(2) wird mit Vorteil für dickere ( $t > R/3$ ), (3) und (4) für dünnere Schichten verwendet.

Es empfiehlt sich jedoch, möglichst dünne Schichten zu untersuchen, da nach der Integration (1) die Einzelheiten der Absorptionskurve (Teilspektren) weniger stark hervortreten. Ausserdem wird der störende  $\gamma$ -Untergrund verhältnismässig stärker, da er linear mit der Schichtdicke anwächst, während die  $\beta$ -Intensität bei  $t = R$  den maximalen Endwert erreicht.

### 5. Kontrolle der Auswertemethode.

Als Beispiel für die Anwendung der beschriebenen Methode möge zunächst das von FEATHER<sup>2)</sup> untersuchte  $\text{Ag}^{106}$  dienen. Seinen  $R_n$ -Werten entsprechen die Energien  $E_n = 2,65 \ 2,44 \ 2,29 \ 2,19 \ 2,11 \ 2,08$ , extrapoliert auf 2,00 MeV. Die neue Methode liefert dagegen, nach Korrektur für die endliche Schichtdicke und für einen Positronenstrahler mit  $Z = 47$ ,  $E_n = 1,94 \ 2,02 \ 2,00 \ 1,98 \ 1,97 \ 1,97 \ 1,99 \ 2,00 \ 2,01$ , woraus auf  $2,00 \pm 0,06$  geschlossen werden kann. Die Erleichterung der Extrapolation, die kaum mehr so bezeichnet werden darf, ist offenbar.

Zur Prüfung der Methode wurde ausserdem eine grosse Zahl von publizierten Absorptionskurven ausgewertet, hauptsächlich diejenigen, welche in den Tabellen von MATTAUCH und FLÜGGE<sup>15)</sup> zur Angabe von Zerfallsenergien benutzt worden sind. In Tabelle 3 gibt Spalte 1 das radioaktive Isotop, 2 den Autor, 3 seine Messmethode und den von ihm angegebenen Energiewert. Zur Entlastung des Literaturverzeichnisses sind die Bezeichnungen der Kernphysikalischen Tabellen von MATTAUCH und FLÜGGE<sup>15)</sup> (Literatur zu den Tabellen IV—VI) übernommen worden. Messmethode:  $S$  = Spektrograph,  $W$  = Wilsonkammer,  $A$  = Absorp-

Tabelle 3a.

1	2	3	4	5	6
Na <sup>22</sup>	L 10	A	0,53 0,53 0,52	0,53 $\pm$ 0,04	
	O 13	S 0,55			
	L 10	W 0,58 $\pm$ 0,03 B			
	M 2	W 0,6 $\pm$ 0,06			
Sc <sup>44</sup>	<sup>16)</sup>	A 1,33 $\pm$ 0,05	1,44 1,44 1,41 1,43 1,43 1,43	1,43 $\pm$ 0,05	
	<sup>17)</sup>	S 1,45 $\pm$ 0,01			
Sc <sup>48</sup>	<sup>18)</sup>	A 0,57	0,58 0,55 0,57 0,56	0,57 $\pm$ 0,04	
	<sup>17)</sup>	S 0,640 $\pm$ 0,004			
	W 8	A 1,4; 0,5			(?)
Cu <sup>61</sup>	R 16	A 0,94	1,09 1,08 1,12 1,22	1,2 $\pm$ 0,1	
	(S 55)	A 1,2 $\pm$ 0,2	1,06 1,11 1,15 1,18 1,22		
	<sup>10)</sup>	S 1,225 $\pm$ 0,015			
Zn <sup>63</sup>	S 55	A 2,3 $\pm$ 0,15	2,15 2,25 2,27 2,32 2,33 2,35 2,37	2,3 $\pm$ 0,1	nach Subtraktion eines weichen Teilspektrums
	D 18	A 1,8	2,07 2,18 2,18 2,18 2,23 2,25 2,26		
	<sup>19)</sup>	S 2,36 $\pm$ 0,03 1,40; 0,46			
	T 9a	S 2,32 $\pm$ 0,05			
	S 8	W 1,92 KU; 0,67 KU			
As <sup>76</sup>	M 42	A (3,24)	n = 6—10	2,75 $\pm$ 0,10	falsche Angabe der Reichweite
	W 13	S 2,78 F			
	S 7	W 2,75 KU; 1,31 KU			
	S 13	W 2,5 F; 1,7; 0,5 F			
In <sup>114</sup>	L 22	A	1,82 1,84 1,89 1,95 1,97 1,97 1,99 2,00 2,00	2,00 $\pm$ 10,08	
	L 22	S 1,98			
	L 20	W 2,15			

tionsmessung,  $F$ ,  $KU$ ,  $B$  = Grenzenergie bestimmt mittels Fermi-Diagramm, Konopinski-Uhlenbeck-Diagramm, beobachtete Grenze. Zu Vergleichszwecken sind sämtliche in <sup>15)</sup> berücksichtigten, teilweise (in Klammern) noch weitere Quellen aufgeführt. In Spalte 4 stehen unsere  $E_n$ -werte, unter 5 eine Abschätzung der Maximalenergie (mit Fehlergrenzen), in Spalte 6 Bemerkungen. Wenn die Autoren von der Absorptionskurve nur den Teil in der Nähe



Tabelle 3b.

1	2	3	4	5	6
Al <sup>26</sup>	F 25	A 1,8	$n = 0-4$	$3,4 \pm 0,5$	Abs. in Cu, ungenau
	B 56	A 1,5	2,2 2,4 2,6 2,8	?	Abs. in Cu, ungenau
	W 16	W 2,99 B			Bester Wert
	M 2	W 4,6 $\pm 0,46$			?
P <sup>30</sup>	(F 25)	A 1,8	$n = 0-4$	$3,4 \pm 0,5$	Abs. in Cu, ungenau
	B 9	W 3,0 $\pm 0,1$			
	M 2	W 3,5 $\pm 0,35$			
Cl <sup>34</sup>	B 56	A 2,5	$n = 0-4$	$3,0 \pm 0,5$	Abs. in Cu, ungenau
	(F 25)	A 1,8	$n = 0-4$	$3,4 \pm 0,5$	
K <sup>38</sup>	R 16	A 1,9	2,45 2,47 2,57 2,69	$2,6 \pm 0,1$	
	(H 70)	A 2	2,45 2,63 2,65 2,59		
Zn <sup>69</sup>	L 46	A 1,1	0,85 0,86 0,86 0,86	$0,86 \pm 0,04$	
	S 8	W 0,99 KU	0,86 0,87		
Ga <sup>66</sup>	M 5	A 3,1	3,43 3,71 3,90 3,90	$3,9 \pm 0,2$	
		W 3,9 B			
Rb <sup>88</sup>	G 10	A 4,6	$2,1 \pm 0,2$ ( $32 \pm 5\%$ )	$5,0 \pm 0,3$	komplex
Rb <sup>89</sup>	G 10	A 3,8	$2,0 \pm 0,2$ ( $82 \pm 4\%$ )	$4,5 \pm 0,3$	komplex
Mo <sup>99</sup>	S 26	A 1,6	1,20 1,20 1,17 1,20	$1,25 \pm 0,1$	( ? )
	S 10	A 1,0	1,20 1,23 1,26 1,29		
Au <sup>198</sup>	20)	A 0,78	0,97 1,01 0,98 0,97	$0,98 \pm 0,05$	

der Reichweite wiedergegeben haben, steht unter 5 diejenige Energie, für welche die Normalkurve der gemessenen am nächsten kommt. Das gleiche gilt bei Messungen mit grosser Streuung. In diesen Fällen gibt Spalte 4 den zur Bestimmung verwendeten Bereich:  $n = 3-7$  bedeutet, dass die Absorptionskurve von  $I = I_0 2^{-3}$  bis  $I_0 2^{-7}$  benutzt werden konnte. Komplexe Spektren werden nach Möglichkeit analysiert.

Die Auswertung der publizierten Kurven kann natürlich nicht den gleichen Grad von Genauigkeit erreichen, wie dies anhand der Originalkurven möglich wäre. Vor allem gilt dies dann, wenn die Intensität in linearem Masstab aufgetragen ist. Eine weitere Einschränkung der Genauigkeit ist wegen der verschiedenen geometrischen Anordnungen und der verschiedenen Registrierapparate, Ionisationskammer und Zählrohr, zu erwarten. Diese Einflüsse werden sich besonders im Anfangsteil der Absorptionskurven auswirken.

Tabelle 3e.

1	2	3	4	5	6
F <sup>20</sup>	C 61 F 20	A W5,0 F	4,46 4,90 5,10 5,18	5,1 $\pm$ 0,3	
Ne <sup>19</sup>	W 16	A 2,3	2,25 2,26 2,23 2,17 2,15 2,18	2,2 $\pm$ 0,1	
Ne <sup>23</sup>	W 16 P 23	W2,2 B A 4,1 $\pm$ 0,3	4,25 4,23 4,28 4,30	4,3 $\pm$ 0,3	ungenau
Sc <sup>43</sup>	16)	A 1,13 $\pm$ 0,05	1,26 1,25 1,25 1,25 1,22 1,22 1,20	1,22 $\pm$ 0,05	(?)
Sc <sup>47</sup>	18)	S 1,11 $\pm$ 0,05 A 0,46	0,50 0,50 0,49 0,49 0,50 0,50 0,50	0,50 $\pm$ 0,04	(?)
V <sup>49</sup>	W 8	A 1,5; 0,26	n = 2,5—6,5	2,00 $\pm$ 0,07	
Mn <sup>51</sup>	W 6 L 43	A 1,9 A 2,0	1,97 2,24 2,30 2,29 2,35 2,35 2,37	2,35 $\pm$ 0,1	
Mn <sup>52</sup>	(L 43)	A 0,7	0,62 0,67	0,7	ungenau
Co <sup>60</sup>	H 32 R 18	W0,77 B A 1,45 $\pm$ 0,1	n = 0—3	2,5 $\pm$ 0,3	(?) ungenau
Cu <sup>62</sup>	(L 38) S 55 C 51 S 35	A A 2,8 $\pm$ 0,3 W2,6 B W3,4 KU	n = 0—3 n = 0—7	1,4 $\pm$ 0,2 3,0 $\pm$ 0,2	ungenau
Ga <sup>68</sup>	M 5	A 1,8	1,98 1,97 1,97 1,95 1,96 1,99	1,97 $\pm$ 0,06	
		W1,9 B			
	R 16 S 8	A 1,85 W1,35 KU	1,81 1,84 1,86 1,93	1,9 $\pm$ 0,1	
Ge <sup>71</sup>	M 7 S 27a S 8	A 1,0 A 1,2 W1,15 KU	1,24 1,23 1,23 1,21 1,22	1,22 $\pm$ 0,04	
Br <sup>78</sup>	S 44	A 2,3	2,15 2,26 2,30 2,34 2,37 2,41 2,42 2,42	2,40 $\pm$ 0,08	
Br <sup>80</sup>					
185 m	S 44 A 8	A 2,2 S 2,0 $\pm$ 0,1	n = 5,5—9,5	2,3 $\pm$ 0,1	komplex
45 h	S 44	A 2,0	n = 5—9	2,0 $\pm$ 0,1	komplex
Br <sup>83</sup>	S 44 L 7	A 1,3 A 1,05	n = 3,5—6,5	1,45 $\pm$ 0,05	komplex
In <sup>116</sup>	(L 22)	A	2,75 2,90 2,82 2,88 2,90 2,92 2,94 2,98 2,96 2,96	2,95 $\pm$ 0,10	
	C 33 G 2	W2,8 W3,2 KU			
I <sup>128</sup>	L 44	A 2,2	2,02 2,06 2,05 2,13 2,13 2,10 2,13 2,13 2,12 2,13	2,13 $\pm$ 0,07	
	A 8 B 2a	S 2,1 $\pm$ 0,1 W2,10 KU; 1,05 KU			
Xe <sup>135</sup>	T 3 21)	W2,40 $\pm$ 0,07 A 0,9	0,88 0,88 0,89 0,90 0,91 0,93	0,90 $\pm$ 0,04	
Cs <sup>138</sup>	G 10	A 2,6	2,56 2,59 2,59 2,61 2,65 2,69	2,65 $\pm$ 0,09	

In Tabelle 3a sind eine Reihe von Aktivitäten aufgeführt, deren Energien, mit dem Spektrographen gemessen, zuverlässig bekannt sind. Die Übereinstimmung der Maximalenergien ist — im Hinblick auf die angedeuteten Unsicherheiten — gut, mit Ausnahme vielleicht von  $\text{Sc}^{48}$ .

In 3b haben wir einige Aktivitäten zusammengestellt, für welche wir Energiewerte erhalten, die zum Teil stark von denjenigen der Autoren abweichen. Zugleich können wir aber in manchen Fällen — wie auch bei  $\text{Cu}^{61}$ ,  $\text{Zn}^{63}$  und  $\text{As}^{76}$  von 3a — Diskrepanzen zwischen den Angaben verschiedener Autoren beheben. Diese rühren grösstenteils von einer Unterschätzung der Reichweite her. Wir glauben daher, dass den hier vorgeschlagenen Energiewerten ein grösserer Wahrheitsgehalt zukommt als den bisher angenommenen.

Für eine grosse Zahl von Isotopen ergibt unsere Auswertung eine gute Bestätigung der Werte der Autoren. Da auch diese von Wert sein kann, ist eine Zusammenstellung nicht überflüssig (Tabelle 3c). Auch hier ist bemerkenswert, dass die  $E_n$ -Werte im allgemeinen gut konstant sind. Es scheint, dass die angegebenen Eichkurven, natürlich mit etwas kleinerer Genauigkeit, auch für abweichende geometrische Anordnungen gebraucht werden können, sofern ebene Absorber benützt werden.

Einige Absorptionskurven konnten nicht ausgewertet werden, vermutlich, weil das Spektrum komplex war, ohne dass die Komponenten getrennt werden konnten. Von den in <sup>15)</sup> benutzten Energieangaben betrifft dies diejenigen von  $\text{Ag}^{111}$ ,  $\text{Ag}^{112}$ ,  $\text{In}^{117}$  (Y 3) und  $\text{I}^{126}$ ,  $\text{I}^{129}$ ,  $\text{I}^{131}$ ,  $\text{I}^{130}$  (L 44) sowie  $\text{Ga}^{70}$  (M 67). Auch die früher immer angestrebten exponentiellen Absorptionskurven ergeben stetig ansteigende und nicht konvergierende  $E_n$ -werte, so dass auf die Auswertung solcher Messungen verzichtet werden muss.

Im allgemeinen darf aber aus den Resultaten der Tabelle 3 der Schluss gezogen werden, dass die Absorptionsmethode die Genauigkeit der zuverlässigsten Untersuchungen mit der Wilsonkammer zum mindesten erreicht. Auch die Messung im Spektrographen ist ihr nur bei sehr grossen Präparatstärken überlegen, sowie bei der Bestimmung von Konversionslinien, die einem Kontinuum überlagert sind, wo die Absorptionsmethode versagt.

## II. $\gamma$ -Strahlung.

### 1. Absorption der Sekundärelektronen.

Die auf BOTHE und KOLHÖRSTER<sup>22)</sup> zurückgehende Methode der Absorptionsmessung besteht darin, dass die von der  $\gamma$ -Strahlung in einem Sekundärstrahler ausgelösten Elektronen zwei Zählrohre durchsetzen und diese in Koinzidenz zum Ansprechen bringen. Die Absorption wird durch Einschieben von Folien zwischen die Zählrohre gemessen (s. Nebenfigur von Fig. 8). Für die Auswertung der Absorptionskurve sind zwei Methoden gebräuchlich:

a) Die Halbwertsdicke beträgt nach BECKER und BOTHE<sup>23)</sup>:  $d_1 = \text{const. } (E/mc^2)^2 / (E/mc^2 + 1)$ , wobei die Konstante experimentell zu 0,233 mm Al bestimmt wurde.

b) Die Reichweite der Sekundärelektronen hängt oberhalb 1 MeV linear von der  $\gamma$ -Energie ab (z. B. CURRAN, DEE und PETRŽILKA<sup>24)</sup>). Freilich ist sie schlecht definiert und der gemessene Wert hängt etwas von der Messgenauigkeit ab.

Wenn beide Methoden das gleiche Resultat ergeben, wird auf eine homogene  $\gamma$ -Strahlung geschlossen; andernfalls gibt b) die Energie des härtesten Quantes, a) eine mittlere Energie.

Die Analyse lässt sich mittels der bei den  $\beta$ -Spektren verwendeten Methode verbessern. Mit Hilfe der von HEITLER<sup>25)</sup> angegebenen Wirkungsquerschnitte berechnen wir das Spektrum  $f(E)dE$  der Sekundärelektronen, die ein  $\gamma$ -Quant der Energie  $E_\gamma$  in einer dünnen Schicht  $dx$  in der Tiefe  $x$  unterhalb der Oberfläche des Strahlers (Al oder Messing) erzeugt. Die Zahl der bei einer Absorberdicke  $d$  registrierten Koinzidenzen ist

$$N(d) = \text{const.} \int_0^{E_{\max}} \int_0^\infty f(E) D(E, x+d) dE dx.$$

$D(E, x+d)$  ist die Wahrscheinlichkeit, dass ein Elektron der Anfangsenergie  $E$  den ganzen Absorber  $x+d$  durchsetzt. Wegen der grossen Winkeldivergenz der  $\gamma$ -Strahlen in der benutzten Anordnung kann isotrope Verteilung der Sekundärelektronen, wie bei den  $\beta$ -Spektren, angenommen werden. Da auch die Öffnungswinkel der in die Zählrohre gelangenden Elektronenbündel in beiden Fällen vergleichbar sind, kann  $D(E, x+d)$  den früher berechneten Absorptionskurven (Fig. 4) entnommen werden. Auf diese Weise ermitteln wir die Absorptionskurven für 0,5, 1,5 und 2,62 MeV und erhalten durch Interpolation zwischen ihren  $d_n$ -Werten die Eichkurven  $E = f(d_n)$  der Fig. 8. Die Kurven für Messingstrahler unterscheiden sich unterhalb 1,5 MeV von denjenigen für Al-Strahler,





da in Messing mehr Photoelektronen ausgelöst werden, wodurch die mittlere Energie der Sekundärstrahlung grösser wird. Die experimentellen Werte stimmen mit denjenigen von Fig. 8 bei 0,51 MeV (Vernichtungsstrahlung) und 1,14 MeV ( $\text{Zn}^{65\ 26}$ ) innerhalb 2%, bei 2,62 MeV ( $\text{Th C''}$ ) innerhalb 3–4% überein. Als Fehlergrenze kann in diesem Energiebereich 5% angenommen werden. Für die Extrapolation zu höheren Energien wurden die Absorptionskurven der bei Beschussung von  $F$  und  $\text{Li}$  mit Protonen entstehenden  $\gamma$ -Strahlen gemessen (6,2 bzw. 17,2 MeV), welche die folgenden  $d_n$ -Werte ergaben: 6,2 MeV: 4,1<sub>3</sub> 5,9<sub>2</sub> 7,4<sub>0</sub> 8,5<sub>1</sub> 9,3<sub>2</sub>, 17,2 MeV: 5,8 11,6 17,4 mm Al. Im Charakter der Kurven scheint sich oberhalb 3 MeV das allmähliche Hervortreten der Paarelektronen, mit einer geringern mittleren Energie, gegenüber den Comptonelektronen zu zeigen, indem die  $d_n$ -Werte langsamer ansteigen.

Der Vergleich von Fig. 8 mit den oben besprochenen üblichen Methoden ergibt:

a) Für die Konstante der Formel von BECKER und BOTHE erhalten wir aus der Kurve für  $d_1$  die Werte 0,13<sub>2</sub>, 0,18<sub>7</sub> und 0,21<sub>9</sub> bei 0,5, 1,5 und 2,62 MeV. Der letzte Wert stimmt gut mit 0,233 überein, welcher ebenfalls mit  $\text{Th C''}$  erhalten wurde, von einer Konstanten scheint man aber nicht sprechen zu dürfen.

b) Die in der Literatur angegebene Reichweite (<sup>24</sup>) fällt zwischen unsere Kurven  $d_7$  und  $d_8$  (extrapoliert), entspricht also etwa derjenigen Absorberdicke, welche die Intensität auf 0,5% herabsetzt und ist bedeutend kleiner als die Reichweite  $R_c$  der Comptonelektronen.

Im Gegensatz zu Fig. 6 sind in Fig. 8 die Absorptionskurven auf  $d = 0$  extrapoliert worden. Es zeigt sich, dass für  $\gamma$ -Energien unterhalb 1,5 MeV die Verwendung von normalen Zählrohren mit einer Wandstärke von rund 100  $\mu$  Al nicht zu empfehlen ist. Wegen des zweimaligen Durchtrittes der Elektronen durch die Zählrohrwand wird die Korrektur für diese gross und unsicher. Die ungefähren Korrekturfaktoren sind in der Nebenfigur abzulesen (vgl. Anhang 1). Vergleichsmessungen zeigen aber, dass der Charakter der Absorptionskurven etwas von der Wandstärke abhängt, indem bei 120  $\mu$  die ersten  $d_n$ -Werte 5–8% grösser werden als die für Folienzählrohre gültigen Werte der Eichkurven. Für grössere  $n$  nehmen die Unterschiede ab. Bewährt haben sich Zählrohre aus Messing von 22 mm Durchmesser, welche auf dem halben Umfang massiv sind, während die andere Hälfte durch eine von Stegen gehaltene Al-Folie von 20  $\mu$  verschlossen ist.

Die Auswertung gemessener Kurven geschieht wie bei den  $\beta$ -Spektren. Aus dem Grad der Konstanz der  $E_n$ -Werte wird auf die Homogenität der Strahlung geschlossen. Eine komplexe Strahlung kann zerlegt werden, wobei aus den Anfangswerten der Absorptionskurven der Komponenten deren Intensitätsverhältnis berechnet werden kann, wenn die  $\gamma$ -Empfindlichkeit der Zählrohre bekannt ist.

## 2. Zählrohrempfindlichkeit.

Die experimentellen und theoretischen Bestimmungen der Empfindlichkeit eines Zählrohres für  $\gamma$ -Strahlen ergeben zum Teil widersprechende Resultate. Vor allem zeigen die Ergebnisse von BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>27)</sup>, dass die häufig benutzte Formel von v. DROSTE<sup>28)</sup> unzutreffend ist. Diese beruht wesentlich auf der Voraussetzung, dass die Absorptionskurven von Comptonelektronenspektren verschiedener Energie zueinander affin seien, was nach Fig. 1 sicher falsch ist. Es ist daher von Interesse, die  $\gamma$ -Empfindlichkeit mit Hilfe der im vorstehenden Abschnitt durchgeführten Rechnungen zu bestimmen. Man erhält (vgl. <sup>27)</sup>):

$$\varepsilon = \pi n_0 \int_0^{E_{\max}} \int_0^{\infty} \sigma(E) D(E, x) dE dx,$$

wobei  $n_0$  die Zahl der Atome im  $\text{cm}^3$  und  $\sigma(E)$  der differentielle Wirkungsquerschnitt für Auslösung eines Elektrons der Energie  $E$  ist. Eine genaue Berechnung von  $D(E, x)$  erforderte die Berücksichtigung der Winkelverteilung der Sekundärelektronen und ist kaum durchführbar. Bei Mitteilung über den ganzen Umfang unterscheidet sich die Winkelverteilung bezüglich der Flächennormalen aber nicht mehr stark von der isotropen Verteilung.  $2 D(E, x)$  ist mit den Absorptionskurven  $I(x)/I_0$  von Fig. 4 vergleichbar. (Der Faktor 2 rührt daher, dass  $D(E, 0) = 0,5$ , weil bei dünner Schicht die Hälfte der ausgelösten Elektronen ins Zählrohrinnere gelangt.) Freilich ist zu erwarten, dass  $2 D(E, x)$  etwas steiler verläuft als  $I(x)/I_0$ , da bei den Messungen der  $\beta$ -Absorption die maximalen Winkel, unter denen die Absorber durchsetzt werden,  $25^\circ$  in der Quer-,  $60^\circ$  in der Längsrichtung betragen, während sich hier die Verteilung über die ganze Halbkugel erstreckt. Eine Abschätzung zeigt, dass dadurch gerade etwa ein Faktor  $\pi/2$  kompensiert wird, so dass die  $\gamma$ -Empfindlichkeit nach der Formel

$$\varepsilon = n_0 \int_0^{E_{\max}} \int_0^{\infty} \sigma(E) I(x)/I_0 dE dx$$

berechnet werden kann. Tabelle 4 enthält die berechneten Werte, zusammen mit denjenigen nach v. DROSTE, angeglichen bei 0,5 MeV, und den experimentellen Daten von BRADT et al.<sup>27)</sup>.

Tabelle 4.

Kathoden- material	$E$	0,5	1,5	2,62 MeV
Al . . . .	ber.	0,20%	0,86%	1,55%
	exp.	$0,21 \pm 0,02$	0,98	$1,61 \pm 0,05$
Messing . .	ber.	0,20	0,75	1,39
	exp.	$0,21 \pm 0,02$	0,88	$1,45 \pm 0,05$
	v. DR.	0,21	0,72	1,07

Es muss bemerkt werden, dass in der Gegend von 1,5 MeV keine neue Bestimmung von  $\varepsilon$  vorliegt, so dass es nicht ausgeschlossen ist, dass die experimentelle Kurve dort etwas zu hoch angenommen worden ist. Ihr allgemeiner Verlauf, vor allem die starke Abweichung gegenüber der Theorie von v. DROSTE bei hohen Energien, wird jedoch durch diese Rechnung ausgezeichnet bestätigt.

Unserm verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. P. Scherrer, sind wir für das fördernde Interesse an dieser Arbeit zu Dank verpflichtet. Für finanzielle Unterstützung danken wir dem Jubiläumsfonds der E.T.H.

Physikalisches Institut der E.T.H., Zürich.

#### ANHANG.

##### 1. Absorption in der Zählrohrwand.

Die Absorption von  $\beta$ -Strahlen in der Wand eines Zählrohrs der Dicke  $\delta$  ist derjenigen in einem ebenen Absorber der Dicke  $d_0 = k \delta$  äquivalent. Nach FLEISCHMANN<sup>29)</sup> ist  $k = 1,5$  zu setzen. Dies ist für kleine Wandstärken richtig. Genauer gilt für parallelen Einfall, unter Voraussetzung exponentieller Absorption:

$$e^{-\lambda d_0} = e^{-\lambda k \delta} = \frac{1}{r} \int_0^r e^{-\lambda \delta \frac{r}{\sqrt{r^2 - x^2}}} dx = \int_0^{\frac{\pi}{2}} e^{-\frac{\lambda \delta}{\cos \varphi}} \cos \varphi d\varphi$$

$x$  ist der Achsenabstand des betrachteten Strahles; der Radius  $r$



des Zählrohres sei gross gegen  $\delta$ . Die graphische Integration ergibt die Werte:

$$\begin{array}{cccccc} \lambda\delta = & 0 & 0,5 & 1 & 1,5 & 2 \\ k = 1,57 \left(\frac{\pi}{2}\right) & 1,36 & 1,29 & 1,27 & 1,25 \end{array}$$

Experimentell wird für  $\lambda\delta = 1$   $k = 1,22 \pm 0,05$  gefunden. Eine Abweichung in dieser Richtung ist zu erwarten: Beim Durchgang durch die Wand wird die Strahlung diffus, wobei die Verteilung bei einem grossen Achsenabstand nicht symmetrisch zur Einfallsrichtung bleibt, sondern in der Richtung der Flächennormalen verzerrt wird. Die in der Wand durchlaufenen Strecken werden etwas kleiner, mit ihnen auch die Absorption.

Da die Absorption in der Zählrohrwand hauptsächlich bei kleinen Energien berücksichtigt werden muss, benützen wir den für  $\lambda\delta = 1$  ( $E_0 \sim 0,6$  MeV) gefundenen Wert von  $k = 1,22$ . Mit  $\delta = 0,115$  mm Al wird  $d_0 = 0,140$  mm Al. Die Willkür dieser Festsetzung spielt für die Ergebnisse keine Rolle, da alle Eichsubstanzen in der gleichen Anordnung aufgenommen wurden. Bei der Auswertung anderer Messungen (z. B. Tab. 3) beträgt die Unsicherheit in  $E_0$  maximal 0,025 mm Al, was nur 0,01 MeV entspricht. Für die Angabe der Energie-Reichweite-Beziehung wurde dagegen die wahre Wandstärke  $\delta$  eingesetzt, da in der Nähe der Reichweite nur die kürzeste Verbindung Quelle-Zählrohr eine Rolle spielt.

## 2. Berechnung der Fermispektren.

Da die Berechnung der Energieverteilung eines  $\beta$ -Spektrums ziemlich mühsam ist, seien einige Hilfsmittel angegeben. Nach FERMI<sup>30)</sup> gilt für einen erlaubten  $\beta$ -Übergang der Grenzenergie  $E_0$ :

$$f(\varepsilon) d\varepsilon = \varepsilon(\varepsilon_0 - \varepsilon)^2 p \Phi(z, \varepsilon) d\varepsilon$$

mit

$$\Phi(z, \varepsilon) = \frac{2^{2s}}{(2s)!^2} \left[ \frac{mc\rho}{\hbar} \right]^{2s-2} p^{2s-2} e^{\pi Z\alpha\varepsilon/p} |\Gamma(s+iZ\alpha\varepsilon/p)|^2$$

$$\varepsilon = 1 + E/mc^2, \quad \varepsilon_0 = 1 + E_0/mc^2, \quad p = \sqrt{\varepsilon^2 - 1}$$

$$\rho = \text{Kernradius}, \quad s = \sqrt{1 - (Z\alpha)^2}, \quad \alpha = e^2/\hbar c.$$

Diese Darstellung ist jedoch für die numerische Auswertung ungünstig, da  $\Phi(Z, \varepsilon)$  für  $\varepsilon \rightarrow 1$  divergiert. Vorteilhafter ist die Aufteilung:

$$f(\varepsilon) d\varepsilon = C(Z) \varepsilon^2 (\varepsilon_0 - \varepsilon)^2 \Theta(Z, \varepsilon) d\varepsilon$$

mit

$$C(Z) = 2\pi \frac{2^{2s}}{(2s)!^2} \left[ \frac{mc\rho}{\hbar} \right]^{2s-2} (Z\alpha)^{2s-1}$$

und

$$\Theta(Z, \varepsilon) = \frac{1}{2\pi\varepsilon} (p/Z\alpha)^{2s-1} e^{\pi Z\alpha\varepsilon/p} |\Gamma(s+iZ\alpha\varepsilon/p)|^2.$$

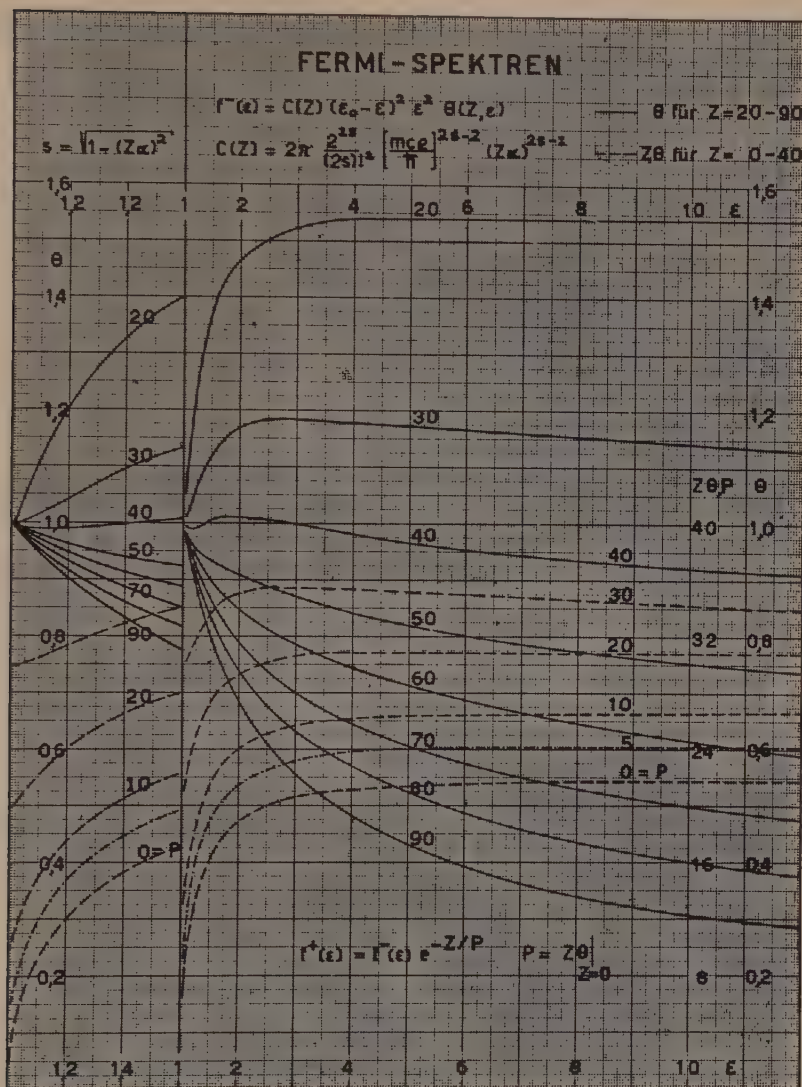


Fig. 9.

In Fig. 9 ist  $\Theta(Z, \varepsilon) = f(\varepsilon)$  für  $Z > 20$ ,  $Z\Theta(Z, \varepsilon)$  für  $Z < 40$  dargestellt. Zur Berechnung wurden die bekannten Werte der Funktion  $|\Gamma(1 + x + iy)|^2$  für  $x = 0$  und  $y = 0$ , deren Ableitungen bis zur vierten Ordnung und die besten Näherungsformeln verwendet. Der maximale Fehler ist 2%.

Für Positronenübergang gilt:

$$f^+(\varepsilon) d\varepsilon = e^{-2\pi Z \alpha \varepsilon/p} f^-(\varepsilon) d\varepsilon = e^{-Z/P} f^-(\varepsilon) d\varepsilon,$$

WO

$$P = [Z\Theta(\varepsilon)] \text{ für } Z = 0.$$

### Literaturverzeichnis.

- 1) BLEULER und ZÜNTI, H.P.A. **19**, 137 (1946).
- 2) FEATHER, Proc. Cambr. phil. Soc. **34**, 599 (1938).
- 3) MADGWICK, Proc. Cambr. phil. Soc. **23**, 970 (1927).
- 4) VARDER, Phil. Mag. **29**, 725 (1929).
- 5) EDDY, Proc. Cambr. phil. Soc. **25**, 50 (1929).
- 6) BOTHE, Hdb. d. Phys. **22/2**, 1 (1933).
- 7) LENARD, Quant. über Kathodenstrahlen (Heidelberg 1918).
- 8) BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK, SCHERRER und STEFFEN, H.P.A. **19**, 219 (1946).
- 9) TOWNSEND, Proc. roy. Soc. A **177**, 357 (1941).
- 10) BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER, H.P.A. **18**, 252 (1945).
- 11) FLAMMERSFELD, Zs. f. Phys. **112**, 727 (1939).
- 12) LAWSON, Phys. Rev. **56**, 131 (1939).
- 13) WATASE und ITOH, Proc. phys.-mat. Soc. Japan **21**, 623 (1939).
- 14) FOURNIER, Ann. phys. **8**, 206 (1927).
- 15) MATTAUCH und FLÜGGE, Kernphys. Tabellen (1942).
- 16) HIBDON, POOL und KURBATOV, Phys. Rev. **67**, 289 (1945).
- 17) SMITH, Phys. Rev. **61**, 578 (1942).
- 18) HIBDON, POOL und KURBATOV, Phys. Rev. **67**, 313 (1945).
- 19) BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK, SCHERRER und STEFFEN, H.P.A. **19**, 221 (1946).
- 20) CLARK, Phys. Rev. **61**, 242 (1942).
- 21) CHIEN SHIUNG WU und SEGRÈ, Phys. Rev. **67**, 142 (1945).
- 22) BOTHE und KOLHÖRSTER, Natw. **17**, 271 (1929).
- 23) BECKER und BOTHE, Zs. f. Phys. **76**, 421 (1932).
- 24) CURRAN, DEE und PETRŽILKA, Proc. roy. Soc. A **169**, 269 (1938).
- 25) HEITLER, Quantum Theorie of Radiation.
- 26) DEUTSCH, ROBERTS und ELLIOTT, Phys. Rev. **61**, 289 (1942).
- 27) BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER, H.P.A. **19**, 77 (1946).
- 28) v. DROSTE, Zs. f. Phys. **100**, 529 (1936).
- 29) FLEISCHMANN, Zs. f. Phys. **103**, 113 (1936).
- 30) FERMI, Zs. f. Phys. **88**, 161 (1934).

## Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft

in Zürich, am 8. September 1946

(anlässlich der 126. Jahresversammlung der Schweizerischen Naturforschenden Gesellschaft, zugleich 200-Jahr-Feier der Naturforschenden Gesellschaft in Zürich)

Präsident: Prof. Dr. G. WENTZEL (Zürich)

Vizepräsident: Prof. Dr. E. MIESCHER (Basel)

Sekretär: Priv.-Doz. Dr. G. BUSCH (Zürich).

---

### *Geschäftlicher Teil.*

Als ordentliche Mitglieder der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft wurden aufgenommen:

HH. H. BLATTNER (Zürich); Dr. E. BODEA (Zürich); Prof. Dr. M. BOSSOLASCO (Genua); A. BRAUN (Zürich); H. FRAUENFELDER (Zürich); Dr. W. HEILPERN (Zürich); F. JONA (Zürich); A. PETERMANN (Lausanne); A. SÜSTRUNCK (Zürich);

und als Kollektivmitglied:

Schweizerische Metallwerke SELVE, Thun.

Die S.P.G. zählt zur Zeit 310 Mitglieder.

Die Frühjahrstagung wird voraussichtlich in Langenthal stattfinden.

---

### *Wissenschaftlicher Teil.*

#### **De la théorie ellipsoïdale des liaisons ondulatoires**

(Erreurs des théories de FRESNEL, KIRCHHOFF, SOMMERFELD et MAXWELL)

par J. DREYFUS-GRAF, Genève.

Divers théoriciens classiques, tels que FRESNEL, KIRCHHOFF ou SOMMERFELD, ont essayé de résoudre un problème ondulatoire fondamental: la diffraction d'une onde sinusoïdale à *front sphérique* (c'est-à-dire émanant d'une source quasi-ponctuelle) par un *mur normal* (c'est-à-dire par un obstacle assimilable à un demi-plan normal à l'axe de liaison entre un émetteur 1 et un récepteur 2).



Ces théoriciens ont tous échoué dans leur tentative. Ils se sont tous heurtés à de telles difficultés mathématiques d'intégration qu'ils ont dû simplifier arbitrairement le problème en remplaçant le front sphérique par une sorte de front cylindrique<sup>1)</sup>, c'est-à-dire en négligeant l'une des trois dimensions de l'espace, bien que diverses publications donnent lieu à des confusions<sup>2)</sup>.

Et pourtant l'importance des appareils mathématiques requis est restée disproportionnée à celle des résultats obtenus, de sorte que les praticiens éprouvent quelque gêne à s'en servir.

Toutes les théories en question émanent plus ou moins directement de la mécanique newtonienne. Aussi ai-je essayé de développer une nouvelle théorie, qui est basée sur un nouveau principe: le *principe de liaison*. Celui-ci est la combinaison généralisée de trois principes connus, ceux de FERMAT, de HUYGENS et de superposition. J'ai constaté à mon grand étonnement qu'alors le problème de la diffraction de l'onde à front *sphérique* devenait soluble par des mathématiques élémentaires alors qu'il était resté inaccessible aux mathématiques supérieures des théoriciens classiques. J'ai publié en avril de cette année un premier fascicule sur la « théorie ellipsoïdale des liaisons ondulatoires »<sup>3)</sup>. Il n'est guère possible de vous en exposer même un bref résumé pendant les quelques minutes que vous voulez bien m'accorder. Je dois donc me borner à en citer le résultat numérique fondamental: c'est que toutes les théories ondulatoires classiques, qu'elles émanent de FRESNEL, de KIRCHHOFF ou de SOMMERFELD et par conséquent de MAXWELL, sont entachées d'une erreur de phase de  $45^\circ$ . La phase de la liaison non perturbée n'est pas celle de la plus courte distance  $d$  qui sépare l'émetteur du récepteur, mais elle est celle de la plus courte distance plus un huitième de longueur d'onde, c'est-à-dire  $d + \lambda/8$ .

Il est évident que, d'après la théorie de MAXWELL par exemple, la phase de l'onde reçue ne peut être autre que celle de la plus courte distance  $d$ , puisque le flux d'énergie correspond au vecteur de POYNTING et qu'il suit une seule ligne droite.

Par contre, selon la représentation de la théorie ellipsoïdale, le flux d'énergie est localisé à l'intérieur d'un *volume* de dimensions finies, l'*ellipsoïde de liaison*. Celui-ci est limité par une surface qui est le lieu géométrique des points de l'espace dont la somme des distances de l'émetteur et du récepteur reste constamment égale à  $d + \lambda/4$ . Il représente la portion d'espace *minima* qui transporte exactement la même énergie qu'un espace illimité. Tandis que le « chemin » du vecteur de POYNTING n'a aucun sens physique, l'ellip-

soïde de liaison pourrait être réalisé expérimentalement: il suffirait de pratiquer dans un bloc *absorbant* une cavité qui aurait exactement les dimensions de l'ellipsoïde de liaison. Il est clair qu'alors la phase reçue ne pourrait pas être celle de la plus courte distance  $d$ , puisque les chemins élémentaires suivis par le flux d'énergie varieraient entre  $d$  et  $d + \lambda/4$ . Cette simple expérience mentale permet déjà de se rendre compte que la longueur du chemin *moyen* doit bien être  $d + \lambda/8$ . C'est elle qui détermine la phase de liaison, c'est-à-dire la phase *mesurable* au récepteur.

Cette correction de  $\lambda/8$  apportée aux théories classiques par la théorie ellipsoïdale peut paraître ridiculement petite, car la plus courte distance de liaison  $d$  est en général incomparablement plus grande que la longueur d'onde  $\lambda$ . Et pourtant, si mes conceptions et démonstrations se confirment exactes, elles ne peuvent manquer de modifier les bases même des théories classiques.

Pour vous donner un léger aperçu des simplifications mathématiques extraordinaires qui résultent de cette minuscule correction je vais vous montrer la comparaison numérique entre les intégrales de FRESNEL et les formules ellipsoïdales correspondantes dans le cas de la diffraction par un mur *absorbant*. On sait que celui-ci représente la première approximation d'un mur matériel et qu'il permet de considérer le phénomène comme s'il était indépendant de la polarisation, pourvu que les angles de diffraction restent petits,  $\alpha_1, \alpha_2 < 12^\circ$ . Voir fig. 1 (numérotation comme dans<sup>3)</sup>):

a) *Récepteur dans l'ombre géométrique du mur*  $v_-$ : La formule (49) classique donne l'amplitude relative  $(S_-/V)_p$  de l'onde à front pseudo-cylindrique en fonction de la hauteur relative  $v_- = h_-/r$  du mur<sup>4)</sup>. «Pseudo-cylindrique» désigne un front cylindrique affecté de l'erreur de phase classique de  $45^\circ$ .  $V$  serait l'amplitude de l'onde non perturbée,  $S_-$  est celle de l'onde perturbée. La formule (49) contient les intégrales de FRESNEL (50), qui restent partie intégrante de toutes les théories classiques, y compris celle de SOMMERFELD, qui passe pour rigoureuse.

Des mathématiciens, tels que KNOCHENHAUER<sup>5)</sup>, ont essayé d'évaluer les intégrales de FRESNEL (50) à l'aide de deux séries convergentes, telles que (63). Toutefois «comme la convergence de ces séries diminue quand  $v$  augmente, on ne peut l'employer que pour de petites valeurs de la limite supérieure». Il n'existe donc pas d'expression asymptotique simple. Les intégrales de FRESNEL rentrent d'ailleurs dans la catégorie de celles qui sont connues sous le nom — prédestiné — des «intégrales d'erreur».



Par contre, la théorie ellipsoïdale exprime l'amplitude relative correspondante  $(S_-/V)_0$  de l'onde à front cylindrique (sans erreur de phase) par la formule élémentaire (46). En comparant les valeurs numériques du tableau, on constate que, jusqu'à  $\nu = 1$ , la formule extrêmement compliquée (49) de FRESNEL donne *naïvement* (à 1% près) les mêmes résultats que la formule extrêmement simple (46) de la théorie ellipsoïdale. D'autre part, pour de grandes valeurs de  $\nu$ , tandis que la formule de FRESNEL devient de plus en plus compliquée, la formule ellipsoïdale (46) tend vers l'expression asymptotique (47)  $= 1/4\nu$ , qui relève de l'arithmétique élémentaire. Tout cela à cause du minuscule écart de phase classique.

b) *Récepteur hors de l'ombre géométrique  $\nu_+$* : Ici l'erreur de phase doit se manifester d'une manière directement accessible à la mesure expérimentale. On peut reconstituer la formule de FRESNEL (60) en partant de la formule ellipsoïdale (57) simplement en remplaçant, dans cette dernière, la phase correcte  $\nu^2 \pi/2$  par la phase erronée  $(\nu + \frac{1}{2})^2 \pi/2$  (à 1% près pour  $\nu \gg 1$ ). On constate qu'alors pour une même abscisse il en résulte une différence d'amplitude *mesurable*, qui atteint même 12% pour  $\nu = 1$ .

Néanmoins toute cette confrontation n'a déjà plus qu'une valeur de rétrospective historique. En effet, le front d'onde qui se rencontre à peu près universellement dans la nature et dans la technique n'est pas pseudo-cylindrique, ni même cylindrique, mais bien *sphérique*, qu'il émane d'un atome ou d'une antenne, ou, dans un autre domaine, d'un haut-parleur ou d'une corde vocale. Dans le cas *sphérique* l'expression asymptotique n'est plus (47)  $= 1/4\nu = r/4h_-$ , mais bien (42)  $= 1/2 \pi \nu = r/2 \pi h_-$ . Ainsi, dans l'ombre géométrique déjà, le rapport entre l'amplitude relative du front cylindrique et celle du front sphérique tend vers  $\pi/2 = 1,57$ . Il en résulte d'une part la confirmation éclatante que FRESNEL a bien négligé l'une des trois dimensions spatiales et d'autre part que ses formules ne sont pas applicables au front sphérique, à moins d'accepter des erreurs d'amplitude de 57%.

La question est désormais posée: si la théorie ellipsoïdale est juste, alors toutes les théories classiques, qu'elles émanent de FRESNEL, de KIRCHHOFF ou de SOMMERFELD et par conséquent de MAXWELL, sont entachées d'une erreur de phase fondamentale de 45°. Et la rectification de cette erreur est indispensable à la solution de problèmes tels que la diffraction de l'onde à front sphérique par un mur, pour commencer.

J'ose espérer qu'il se trouvera des théoriciens et des expérimentateurs



tateurs particulièrement qualifiés qui voudront bien contribuer à donner une réponse probante à la question ouverte.

#### Bibliographie:

- 1) Handbuch der Physik, XX, Berlin 1928, p. 267.
- 2) BORN, Optik, Berlin 1933, p. 155.
- 3) DREYFUS-GRAF, Physique des liaisons I, *La théorie ellipsoïdale des liaisons ondulatoires*, diffraction par un mur, confrontation avec les théories de FRESNEL, KIRCHHOFF et SOMMERFELD, chez Rouge & Cie S.A., Lausanne 1946. — Voir aussi: Helv. Phys. Acta XVII, IV (1944), *Liaisons quasi-optiques: modèles d'ellipsoïdes et d'antennes spatiales, avec résultats expérimentaux*. Compte-rendu des communications à la séance de la Société suisse de physique du 6 mai 1944, entre autres des mesures effectuées au Bureau fédéral des poids et mesures, grâce à la complaisance de ses directeurs, MM. BUCHMÜLLER et HANS KÖNIG.
- 4) FRESNEL, Oeuvres complètes I, Paris 1866.
- 5) WOOD, Optique physique I, Paris 1913, p. 238.

### Sur les spectres transitoires d'éléments phonétiques

(analyse sonographique)

par J. DREYFUS-GRAF, Genève.

L'étude physique des spectres d'éléments phonétiques, tels que voyelles ou consonnes parlées, présente un intérêt éminent. En effet, la connaissance de ces spectres constitue une étape préliminaire, entre autres, à la solution d'un problème technique de premier ordre: la transformation automatique du langage parlé en actions mécaniques déterminées, pouvant commander par exemple une machine à écrire ou un scripteur phonétique, ou encore des sélecteurs de téléphone automatique.

Les phénomènes à étudier, les éléments phonétiques, sont des trains d'onde acoustique typiques, dont il existe par exemple une trentaine dans la langue française. Les spectres (de fréquence) en représentent la décomposition en éléments sinusoïdaux, selon l'analyse de FOURIER. Toutefois, «un phénomène n'existant pas physiquement sans récepteur susceptible de le mesurer et sa description étant imparfaite si son émetteur n'est pas identifié», on se trouve ramené au concept de «liaison = récepteur + phénomène + émetteur».

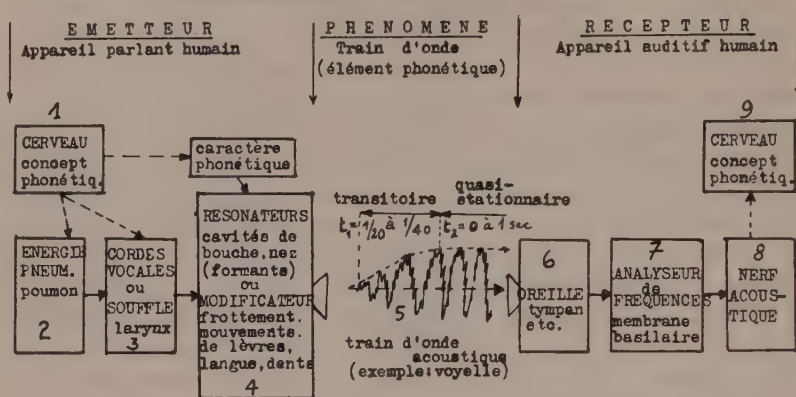
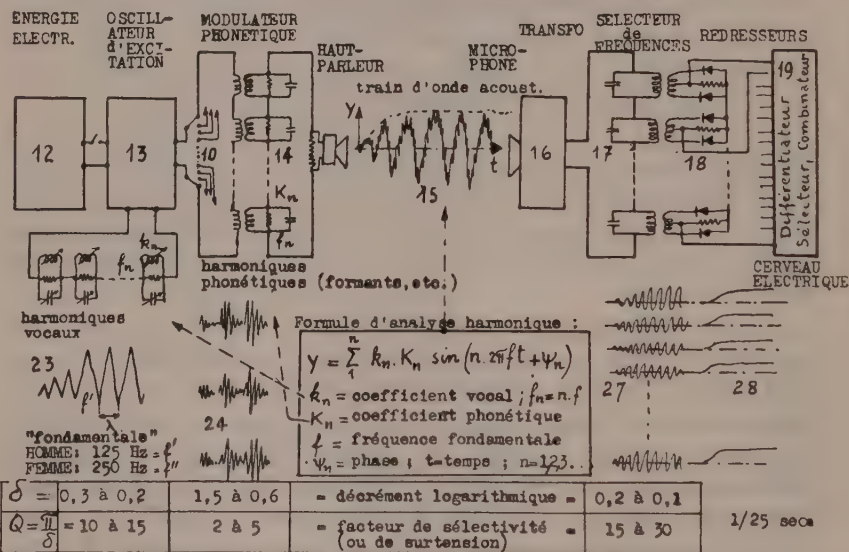
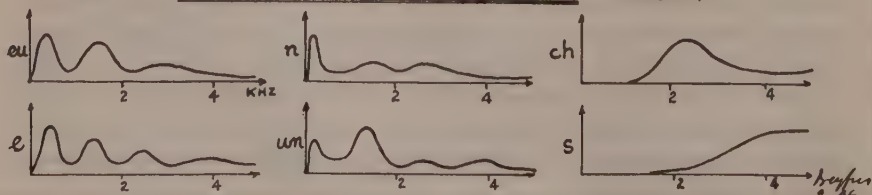
La «liaison phonétique» est une liaison ondulatoire très complexe, l'émetteur et le récepteur en étant respectivement les appareils parlant et auditif humains. Grâce aux travaux de divers savants, tels que HELMHOLTZ, HERMANN, FLETCHER<sup>1)</sup>, TRENDLENBURG<sup>2)</sup>, STUMPF<sup>3)</sup> et autres, nous en avons de nombreuses connaissances, mais tous les mystères de l'oreille, en particulier, sont loin d'être percés.

La fig. 1 résume schématiquement les principaux éléments d'une liaison phonétique et leur analogue électrique.

Le caractère principal du *récepteur* est qu'il comprend (très probablement) un *analyseur de fréquence* 17 situé dans la membrane basilaire. Celui-ci est comparable à une harpe de 15.000 cordes ou à un circuit électrique de résonateurs accordés sur des fréquences comprises entre 30 et 15.000 Hz. Ces «cordes» ayant un décrétement logarithmique de 0,1 à 0,2<sup>4</sup>), chaque onde sinusoïdale en ébranle tout un groupe. La «harpe» est incapable de discerner les *phases* d'une série de composantes harmoniques éloignées. Elle n'est sensible qu'aux différences de phases associées à des fréquences suffisamment rapprochées pour produire des battements. Ce qui s'explique par la grandeur finie du décrétement. L'analyse de FOURIER, qui est mathématique, correspond donc, dans certaines limites, à une réalité *physique*, c'est-à-dire *mesurable*, mais les phases des composantes harmoniques n'interviennent pas pour des résonateurs de fréquences non voisines. Ce fait permet d'associer souvent un redresseur 18 à chaque résonateur 17. Ainsi le cerveau électrique 19 n'enregistre que les *amplitudes* 28 des composantes, à l'exclusion des phases qui leur sont associées.

D'autre part, il faut rappeler que, selon la loi logarithmique de WEBER-FECHNER, la perception auditive de l'intensité sonore est essentiellement sensible aux *différences* de niveaux énergétiques. Enfin que l'oreille ne perçoit distinctement une succession de sons, tels que ceux d'une trille, que si les intervalles de temps sont supérieurs à  $\frac{1}{25}$  sec.

Voyons maintenant l'*émetteur*. Les cordes vocales ou le souffle (qui va engendrer un élément phonétique) sont comparables à un oscillateur pourvu de nombreux harmoniques de fréquences  $f_n$  et d'amplitudes  $k_n$ , selon la formule d'analyse harmonique. D'après HELMHOLTZ, chaque voyelle est représentable par une série de FOURIER, les amplitudes de certaines composantes, de fréquence déterminée, étant renforcée par des résonances de cavités buccales. La fréquence «fondamentale»  $f$  serait celle du parleur à l'état «stationnaire», c'est-à-dire d'environ 125 Hz pour l'homme et de 250 Hz pour la femme. HERMANN s'accorde avec HELMHOLTZ en ce qu'il considère aussi la résonance buccale comme déterminante pour le caractère de la voyelle. Mais il remplace l'oscillateur d'excitation harmonique par une sorte d'impulsion. Il obtient des régions de fréquences caractéristiques qu'il nomme «formants», et qui peuvent comprendre des composantes anharmoniques par rapport à la «fondamentale».

Fig.1 LIAISON PHONETIQUE (schéma)SCHEMA ELECTRIQUE ANALOGUEFig.2 SPECTRES TRANSITOIRES (exemples)

En réalité, il semble pourtant qu'une voyelle n'est excitée ni par une oscillation stationnaire ni par une sorte d'impulsion, mais bien par une oscillation modulée en amplitude (accents) et aussi un peu en phase (intonation).

Examinons, à titre d'exemple, le phénomène tel qu'il se présente sur l'écran d'un oscillographe cathodique, c'est-à-dire un train d'onde 5 ou 15. Celui-ci présente une partie transitoire (initiale) de durée  $t_1$ , variable environ entre  $1/30$  et  $1/60$  sec, et une partie *quasi*-stationnaire, de durée  $t_2$  très variable. Il ne semble pas que celle-ci (ni la partie transitoire finale) soit déterminante pour l'intelligibilité du contenu phonétique. En effet, un langage chanté très lentement paraît moins intelligible qu'un langage rapide et sec. Observation qui concorderait avec la loi de WEBER-FECHNER ainsi qu'avec le pouvoir séparateur d'éléments de trilles.

D'autre part, en portant son attention sur les spectres des parties transitoires d'éléments phonétiques on comble du même coup le fossé qui séparait, selon HELMHOLTZ, les voyelles vocalisées (spectres discrets) des voyelles murmurées ou des consonnes non vocalisées (spectres continus). A l'échelle macroscopique, les spectres transitoires sont tous continus. On peut cependant, en première approximation, se passer des intégrales de FOURIER et conserver la formule d'analyse harmonique. Mais la fréquence fondamentale n'est plus celle du parleur à l'état «stationnaire» (environ 125 ou 250 Hz): elle prend une valeur d'autant plus petite que le phénomène transitoire est plus bref. Tout se passe comme s'il se produisait non seulement des fréquences anharmoniques (HERMANN), mais aussi des sous-harmoniques par rapport à la «fondamentale stationnaire».

La fig. 2 montre provisoirement quelques résultats de mesures expérimentales effectuées par l'auteur et concernant les spectres transitoires de divers éléments phonétiques. Ceux-ci correspondent à des voix masculines dont la «fondamentale» a été variée entre 125 et 250 Hz environ. Le formant principal de la consonne «n», par exemple, reste localisé autour de 120 Hz, même pour une «fondamentale» de 250 Hz. Ce résultat paraît en accord avec le fait que la cavité nasale de l'arrière-bouche est plus grande que celle de la bouche qui détermine la voyelle «ou» et dont le formant est autour de 220 Hz, mais il semble en désaccord avec les publications antérieures de spectres.

D'une manière générale, toutes les voyelles et consonnes ont présenté des formants caractéristiques, relativement indépendants de la vitesse du parler et de la hauteur de voix. Les formants de



fréquences inférieures à 2000 Hz environ n'ont pas été modifiés sensiblement par une voix de femme. Le timbre de voix personnel se manifeste au delà de 2000 Hz. Il peut être éliminé ou sélectionné par divers procédés.

Les mesures expérimentales ont été effectuées au laboratoire radio-électrique du Technicum de Genève, grâce à la complaisance du Professeur ROBERT LUTHI, qui a bien voulu mettre les instruments de mesure indispensables à la disposition de l'auteur.

Le dispositif à l'aide duquel les spectres transitoires ont pu être établis fait partie d'un nouvel appareil imaginé par l'auteur et dénommé «sonographe». Il comprend des différentiateurs, des sélecteurs et des combineurs spéciaux. La publication de la description de cet appareil doit être remise à une date ultérieure. Il suffit de remarquer ici qu'en raison des grands décréments logarithmiques correspondant aux formants, le nombre de filtres nécessaire est incomparablement plus petit que celui des résonateurs de l'oreille. L'analyse sonographique confirme l'existence dans l'oreille d'un analyseur de fréquence indépendant des phases. Elle démontre que rien ne s'oppose physiquement à la réalisation industrielle d'appareils qui transformeront le langage parlé en actions mécaniques déterminées, pouvant commander par exemple une machine à écrire phonétique.

#### Bibliographie:

- <sup>1)</sup> Handbuch der Physik VIII, Berlin 1927, p. 450—538.
- <sup>2)</sup> TRENDLENBURG, Klänge und Geräusche, Berlin 1935.
- <sup>2)</sup> STUMPF, Sprachlaute, Berlin 1926.
- <sup>3)</sup> Handbuch der Physik VIII, Berlin 1927, p. 533—535.

### Absorptionsspektren zweiatomiger Radikale im thermischen Gleichgewicht

von K. WIELAND, Zürich.

Man kennt heute bereits zahlreiche Absorptionsspektren zweiatomiger Radikale, wie z. B. OH, CN, CaCl, ZnF, AlH, SiS, PbBr und viele andere mehr<sup>1)</sup>, die im Temperaturbereich von ca. 1000°—1600° C durch thermische Zersetzung der entsprechenden anorganischen Dämpfe, meistens in *offenen* Ofenrohren, erzeugt werden können. Will man derartige Radikale in einem genau definierten thermischen Gleichgewicht untersuchen, so muss man die betref-

<sup>1)</sup> Eine vollständige Zusammenstellung (bis 1940) findet sich bei R. W. B. PEARSE und A. G. GAYDON, *The Identification of Molecular Spectra*. London, Chapman and Hall (1941).

fenden Substanzen zweckmässigerweise in *geschlossenen Quarzröhren*, d. h. bei bekannten Temperatur- und Druckverhältnissen spektrographieren. Das bedeutet Beschränkung auf eine Maximaltemperatur von etwa  $1200^{\circ}\text{C}$ , da bei höheren Temperaturen Quarz trübe und weich wird. Tatsächlich hat sich gezeigt, dass die Absorptionsspektren einer ganzen Reihe von Radikalen schon bei Temperaturen unterhalb  $1200^{\circ}\text{C}$  photographiert werden können. In diesem Temperaturbereich sind z. B. die Radikal-Gleichgewichte  $\text{C}_2\text{N}_2 \rightleftharpoons 2\text{CN}^1)$  und  $\text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{OH} + \frac{1}{2}\text{H}_2^2)$  auf Grund der Absorptionsspektren von CN bzw. OH quantitativ gemessen worden.

Unter Benützung von 10 cm langen Quarzrohren und bei kleinen Nulldrucken (ca. 5–25 mm) habe ich, teils zusammen mit Herrn A. HERCZOG, im Temperaturgebiet von  $900^{\circ}$ – $1200^{\circ}\text{C}$  die thermische Dissoziation einiger Halogenide von Quecksilber, Kadmium und Zink untersucht. Wir konnten bis jetzt bei  $\text{HgCl}_2$ ,  $\text{HgBr}_2$ ,  $\text{HgJ}_2$  und  $\text{CdJ}_2$  die Absorptionsspektren der entsprechenden Radikale auffinden. Diese Bandenspektren decken sich mit bekannten Banden des Emissionsspektrums, die dem zweiatomigen Radikal angehören. Bei Anwendung zu grosser Drucke wird das Absorptionsspektrum des Radikals  $\text{MeX}$  von demjenigen des undissoziierten Moleküls  $\text{MeX}_2$  überdeckt, auch können dann die von den Halogenmolekülen  $\text{X}_2$  herrührenden Absorptionsbanden stören. Man kann aber die Bedingungen, die für das Erscheinen der Spektren dieser Radikale massgebend sind, durch Zugabe des Metalls Me in grossem Überschuss günstiger gestalten. Denn dadurch wird im Gleichgewicht (I)  $\frac{(\text{Me})(\text{X}_2)}{(\text{MeX}_2)}$  der unerwünschte Partialdruck des Halogens  $\text{X}_2$  herabgesetzt und infolgedessen im Gleichgewicht (II)  $\frac{(\text{MeX})(\text{X}_2)^{1/2}}{(\text{MeX}_2)}$  derjenige des Radikals  $\text{MeX}$  erhöht. Im Falle von Quecksilberjodid z. B. erscheint das Absorptionsspektrum des Radikals  $\text{HgJ}$  ohne Zugabe von Hg erst bei etwa 20 mm Nulldruck von  $\text{HgJ}_2$ , mit Zusatz von 100 mm Hg dagegen schon bei einem Nulldruck von 3 mm.

Bis jetzt haben Herr HERCZOG und ich nur bei  $\text{CdJ}_2$ , wo im Temperaturbereich  $900$ – $1200^{\circ}\text{C}$  die Radikalbildung gemäss Gl. II bereits beträchtlich ist, das vollständige Gleichgewicht absorptionspektrographisch ermitteln können<sup>3)</sup>. Die thermische Dissoziation der Quecksilberhalogenide im Temperaturbereich  $700^{\circ}$  bis

<sup>1)</sup> G. B. KISTIAKOWSKY und H. GERSCHINOWITZ, J. chem. Phys. **1**, 432 (1933).  
J. U. WHITE, J. chem. Phys. **8**, 459 (1940).

<sup>2)</sup> R. J. DWYER und O. OLDENBERG, J. Chem. Phys. **12**, 351 (1944).

<sup>3)</sup> Erscheint demnächst in Helv. Chim. Acta **29** (1946).

1200° C ist früher von BRAUNE und KNOKE<sup>1)</sup> mittels Druckmessungen sehr genau gemessen worden. Diese experimentellen Ergebnisse sprechen für einen einfachen Zerfall gemäss Gl. I, also ohne Radikalbildung. Nachdem auch eine von mir durchgeführte thermodynamische Berechnung des Gleichgewichtes von  $\text{HgCl}_2$ <sup>2)</sup> die Messungen von B. u. K. sehr gut bestätigen können, kam die Auffindung der Absorptionsspektren der Radikale  $\text{HgX}$  unerwartet. Die scheinbare Diskrepanz erklärt sich dadurch, dass diese Absorptionsspektren schon bei sehr kleinen Partialdrucken von  $\text{HgX}$  erscheinen, die ausserhalb der Messgenauigkeit von B. u. K. liegen. Dies zeigt die folgende Zusammenstellung für  $\text{HgCl}_2$ . Bei einem Nulldruck von 17,75 bzw. 124,7 mm an undissoziierten  $\text{HgCl}_2$  und bei einer Temperatur von 1500° K, d. h. unter Bedingungen, wie sie bei meinen Absorptionsspektren bzw. bei den Messungen von B. u. K. ungefähr erfüllt waren, berechnen sich die folgenden Partialdrucke in mm (Näheres betr. Berechnung siehe *Nature* loc. cit.<sup>3)</sup>):

$P^0$	( $\text{HgCl}_2$ )	( $\text{HgCl}$ )	( $\text{Hg}$ )	( $\text{Cl}_2$ )	( $\text{Cl}$ )	$P$ (total) 1500° C
17,75	62,3	0,1	35,1	30,7	8,8	137 mm
124,7	578,8	0,35	104,0	96,3	15,6	795 „
124,7	gemessen von B. u. K.					793 mm

Man erkennt daraus, dass gegebenenfalls noch sehr kleine Konzentrationen an Radikalen absorptionspektrographisch nachgewiesen werden können.

### Sur la détermination et la mesure du magnétogalvanisme transversal

par ALBERT PEERIER, Lausanne.

L'auteur décrit sommairement deux dispositifs nouveaux pour la mesure de l'effet Hall. Entre eux et les appareils usités jusqu'ici, il y a des différences de principe. — La *rotation des surfaces équipotielles*, éliminée, fait place à *celle des lignes de courant*. Les mesures se ramènent finalement à des comparaisons d'intensités à différence de potentiel nulle au lieu d'observations de potentiel à intensité nulle.

<sup>1)</sup> H. BRAUNE und S. KNOKE, Z. physikal. Chem. **152**, 409 (1931).

<sup>2)</sup> K. WIELAND, *Nature* **156**, 504 (1945).

Ce principe implique dans son application des dispositifs qui sont, eux aussi, pratiquement inverses de ceux que l'on employait et emploie encore: une lame rectangulaire est intercalée entre les électrodes à faibles réactions magnétogalvaniques, en sorte que le courant «primaire» la traverse *normalement*. Corrélativement, le *champ magnétique* agit, lui, *parallèlement au plan de la lame-épreuve*.

Les appareils réalisés se distinguent par deux modes de mesure de l'intensité magnétogalvanique transversale. Dans l'un, ce courant est envoyé dans un circuit fermé sur l'éprouvette et peut se lire directement sur un *ampèremètre* une fois la tension de Hall annulée à l'aide d'une source auxiliaire connectée dans ce circuit; on peut aussi le dériver d'une manière appropriée sur le circuit primaire.

Dans l'autre appareil, les électrodes d'amenée du primaire sont partagées sur toute leur longueur en deux moitiés égales par une incision parallèle aux lignes de courant puis reprennent contact à l'entrée et à la sortie. L'éprouvette constitue alors en partie le tronçon transversal d'un pont de Wheatstone symétrique et équilibré; l'intervention du champ magnétique rompt la symétrie des courants et l'on compense les résistances en sorte que la *différence des intensités* soit précisément le courant magnétogalvanique transversal. Deux réalisations d'étude sont montrées en projection.

Cette technique est instituée essentiellement en vue de soumettre à l'expérience la représentation théorique nouvelle proposée par l'auteur<sup>1)</sup> et à vérifier en particulier si le nouveau paramètre «conduction magnétogalvanique transversale»  $\lambda_y$ <sup>2)</sup> varie avec la température suivant des lois se rapprochant de celles, normales, de la conduction électronique dont la théorie des métaux rend compte.

Des calculs exécutés à l'aide de données numériques connues semblent le montrer, toutefois les chiffres utilisés ne sont pas liés avec certitude. Mais indépendamment, ces méthodes offrent des avantages techniques marqués.

1. Les réglages ont simplement à *annuler* des différences de potentiel; cela assure des conditions éminemment favorables à l'emploi de courants alternatifs et par là à l'élimination des parasites thermiques si gênants. On est libéré du même coup de la nécessité de potentiomètres.

<sup>1)</sup> Voir notamment: ALB. PERRIER, Grandeurs et formules théoriques nouvelles pour les phénomènes galvanomagnétiques et thermomagnétiques, H.P.A. vol. III, pp. 317 et s. (1930).

<sup>2)</sup>  $\lambda_y = R\tilde{H} / (q + \delta q)^2$  en première approximation.



2. Les intensités à déterminer sont d'ordres accessibles déjà à des ampèremètres de fabrication courante.

3. Sans sacrifier de la sensibilité, on peut réduire très notablement la dimension des éprouvettes; conséquences:

a) réduction à proportion des dimensions des cryostats ou thermostats, d'où simplification notable des expériences à basse et à haute température.

b) abaissement de l'étendue des entrefers; possibilité en d'autres termes ou bien de gagner notablement en intensité des champs magnétiques ou bien de se contenter d'électro-aimants beaucoup moins volumineux partant moins onéreux, soit par eux-mêmes, soit en ce qui touche la consommation d'énergie électrique.

c) possibilité d'étude d'individus cristallins que l'on ne peut trouver qu'en petites dimensions.

4. L'aimantation parallèle au plan des lames modifie jusqu'à l'ordre de grandeur des champs démagnétisants; en sorte que la saturation des corps ferromagnétiques, particulièrement importante, est accessible de manière incomparablement plus aisée et complète.

5. On relève enfin une supériorité *de principe* concernant l'étude des cristaux: on peut ici assurer sans ambiguïté une orientation *fixe* (p. ex. parallélisme) des vecteurs caractéristiques (champs, densités de courant) par rapport aux directions de symétrie, et cela pour tous les degrés d'aimantation. Tel n'était pas le cas jusqu'ici, au moins avec des effets intenses.

### Längsschwingungen dicker Stäbe

von H. MÄHLY, ETH., Zürich.

Da die Differentialgleichung für elastische Schwingungen ungleich komplizierter ist, als etwa die Wellengleichung  $\Delta u = \ddot{u}$ , so ist es nur in ganz wenigen Fällen möglich, das durch Differentialgleichung und Randbedingungen gegebene *Eigenwertproblem* exakt zu lösen, dagegen können oft brauchbare *Näherungen* berechnet werden.

Für einen „unendlich schlanken“ Stab mit freien Enden ergibt sich bekanntlich die Grundfrequenz zu

$$\nu = \frac{1}{2l} \sqrt{\frac{E}{\rho}} \quad \text{oder} \quad \omega = \frac{\pi}{l} \sqrt{\frac{E}{\rho}}$$

$E$  = Elastizitätsmodul     $\rho$  = Dichte     $l$  = Länge des Stabes.

Legen wir den Ursprung eines Koordinatensystems  $x, y, z$  in die Mitte des Stabes und die  $z$ -Achse parallel zu seiner Längsachse, deren Länge wir zur Bequemlichkeit gleich  $\pi$  setzen, so ist die Verschiebung durch

$$w = a \sin z \cos \omega t$$

gegeben. Sind aber die Querdimensionen des Stabes nicht mehr „unendlich klein“, so müssen wir die Querkontraktion berücksichtigen. Setzen wir für die Verschiebungen  $u, v, w$  in den Richtungen  $x, y, z$

$$\begin{aligned} u &= a \cos z (-\mu x) \cos \omega t \\ v &= a \cos z (-\mu y) \cos \omega t \\ w &= a \sin z \left( -\frac{\mu x^2}{2} - \frac{\mu y^2}{2} + 1 \right) \cos \omega t \\ \mu &= \text{Querdehnungszahl} \end{aligned} \quad (1)$$

so können wir die Frequenz berechnen, indem wir die potentielle Energie zur Zeit der grössten Auslenkung gleich der kinetischen zur Zeit der grössten Geschwindigkeit setzen, und man kann zeigen, dass der so erhaltene Näherungswert nie kleiner sein kann als die Grundfrequenz. Nehmen wir als Beispiel einen *quadratischen Stab mit der Dicke  $2\varphi$* , so wird in 1. Näherung

$$\omega^2 = \frac{E}{\rho} \left( 1 - \frac{\mu^2 \varphi^2}{3} \right) \text{ für kleine } \varphi. {}^1) \quad (2)$$

Nun lässt sich aber für den Würfel der tiefste „Eigenwert“ (d. h.  $\omega^2$  oder kurz  $\lambda$ ), der dreifach entartet ist, exakt angeben:

$$\lambda = \omega^2 = \frac{E}{\rho} \cdot \frac{1}{1+\mu} \quad \text{für } \varphi = \frac{\pi}{2} \text{ (Würfel)} \quad (3)$$

und eine zugehörige Eigenfunktion ist z. B. durch

$$\begin{aligned} u &= \cos z (-b \sin x) \cos \omega t \\ v &= \cos z (-b \sin y) \cos \omega t \\ w &= \sin z (b \cos x + b \cos y) \cos \omega t \end{aligned} \quad (4)$$

gegeben. Vergleicht man nun (1) und (4), so liegt es nahe, zur Gewinnung einer „Interpolationsformel“ für  $0 < \varphi < \frac{\pi}{2}$  den Ansatz

$$\begin{aligned} u &= \cos z (-b \sin x) \cos \omega t \\ v &= \cos z (-b \sin y) \cos \omega t \\ w &= \sin z (b \cos x + b \cos y + a) \cos \omega t \end{aligned} \quad (5)$$

<sup>1)</sup> Vgl. RAYLEIGH, Theory of Sound, London 1877, Vol. I, S. 197.

zu verwenden, und seltsamerweise lassen sich mit diesem Ansatz die sämtlichen Randbedingungen erfüllen (d. h. die Normal- und Schubkräfte verschwinden auf allen 6 Flächen), wenn wir

$$\frac{a}{b} = \frac{1-2\mu}{\mu} \cos \varphi$$

setzen. Das hat den grossen Vorteil, dass der Fehler der Näherung abgeschätzt werden kann, doch kann ich leider in diesem Rahmen das Verfahren nicht erläutern. — Der genäherte Eigenwert beträgt

$$\lambda_{\text{gen}} = \frac{E}{\varrho(1+\mu)} \cdot \frac{(1-3\mu+2\mu^2)c^2 + (4\mu-6\mu^2)sc + 2\mu^2(1+s^2)}{(1-4\mu+4\mu^2)c^2 + (4\mu-8\mu^2)sc + 2\mu^2(1+s^2)} \geq \lambda = \omega^2$$

$$\text{mit } c = \cos \varphi \quad \text{und } s = \frac{1}{\varphi} \cdot \sin \varphi.$$

Für kleine  $\varphi$  ergibt sich in 1. Näherung wieder Gleichung (2), und aus der oben erwähnten Fehlerabschätzung folgt, dass diese Entwicklung nicht nur für  $\lambda_{\text{gen}}$ , sondern wirklich auch für  $\lambda = \omega^2$  gilt; dasselbe gilt für die Tangente bei  $\varphi = \pi/2$  (Würfel): es ist

$$\frac{d\lambda_{\text{gen}}}{d\varphi} = \frac{d\lambda}{d\varphi} = -\lambda \cdot \frac{2\pi}{4+\pi^2} = -\frac{E}{\varrho(1+\mu)} \cdot \frac{2\pi}{4+\pi^2} \quad \left(\text{für } \varphi = \frac{\pi}{2}\right).$$

Der Abstand der Fehlerschranken erreicht sein Maximum bei etwa  $\varphi = 0,8 \cdot \pi/2$ , wo er z. B. für  $\mu = 0,3$  ca. 1% von  $\lambda$  beträgt.

Ähnlich wie für einen Stab mit quadratischem Querschnitt lässt sich durch eine leichte Abänderung des Ansatzes (4) auch die Grundschwingung runder und rechteckiger Stäbe berechnen, letztere sogar für gewisse anisotrope Materialien, wobei man aber nicht immer gute Näherungen erhält.

### Bericht über ein hochempfindliches Zählrohr für $\gamma$ -Strahlen und dessen technische Anwendungen

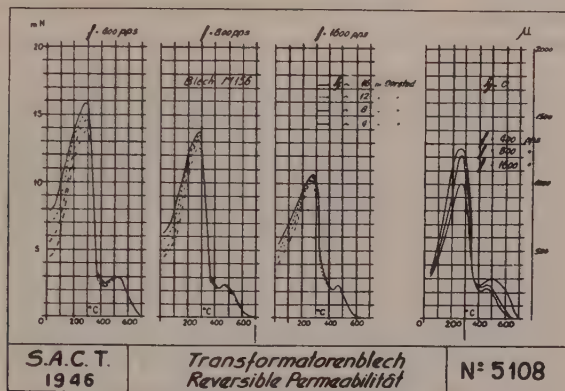
von G. HERZOG, Houston (Texas).

(Wird anderweitig ausführlich veröffentlicht.)

# Temperaturabhängigkeit der ferromagnetischen Eigenschaften bei schwachen Feldern und Curiepunkt

von R. GOLDSCHMIDT, Cossonay-Gare.

Nach Hinweis auf Untersuchungen von GERLACH und HONDA an reinem Eisen und frühere eigene Untersuchungen an Eisennickellegierungen bei schwachen Feldern betr. den Hopkinson-effekt (Maximum der Anfangspermeabilität vor Erreichung des



Curiepunktes) und das Maximum des Nachwirkungsverlustwinkels wird gezeigt, wie eigenartig sich Eisensiliziumlegierungen (Transformatorblech) bezüglich der Temperaturabhängigkeit von Permeabilität (siehe Abbildung) und Verlusten verhalten.

## Charakteristische Farbstoffeinlagerungen in seignetteelektrischen Kristallen

VON H. BLATTNER, B. MATTHIAS UND W. MERZ, ETH., Zürich.

Die Mischkristallbildung zwischen anorganischen Verbindungen und mit ihnen nicht isomorphen organischen Farbstoffen ist selten, wobei die bekanntesten Beispiele etwa die folgenden sind: Kaliumsulfat mit Ponceaurot oder Fuchsin, und Barium- oder Bleinitrat mit Methylenblau. Es zeigen sich hier gesetzmässige Einlagerungen über deren Bindungsmechanismus bis jetzt aber noch nichts Endgültiges ausgesagt werden kann. Auch spätere Untersuchungen von HAHN<sup>1)</sup>, der Spuren radioaktiver Stoffe mit anorganischen Kristallen zu mischen versuchte, ergaben, dass nur in bestimmten Netzebenen eine gemeinsame Kristallisation erfolgen kann. Der

<sup>1)</sup> O. HAHN, Z. Krist. **87**, 387 (1934).



Nachweis hierfür liess sich durch die Schwärzung der photographischen Platten erbringen. Nach BUNN<sup>1)</sup> sollte diese partiell stattfindende Mischbarkeit einer nur teilweisen Isomorphie in den entsprechenden Netzebenen der beiden Komponenten zuzuschreiben sein.

In den letzten Jahren wurde nun durch NEUHAUS<sup>2)</sup> die Mischkristallbildung von Phthal- und Meconsäure mit Alizarinfarbstoffen bestimmt. Hierbei ergab sich mit Wahrscheinlichkeit, dass die Farbstoffeinlagerung zum grossen Teil über sogenannte Wasserstoffbrücken erfolgte. Diese Tatsache war nun für die Untersuchung der Seignettelektrika wie Kalium-Natrium-Tartrat, Kalium- und Rubidiumdihydrogenphosphat von Bedeutung, da in der Existenz der Wasserstoffbrücken in diesen Kristallen eine Ursache für das abnormale dielektrische Verhalten vermutet wird.

Schon im Jahre 1879 hatte VON SEHERR-THOSS<sup>3)</sup>, wenn damals auch vergeblich, versucht, einbasisches Ammoniumphosphat mit Hämatoxylin auskristallisieren zu lassen, ohne jedoch zu wissen, dass sich hierdurch eine Möglichkeit zur Bestätigung der Strukturanalyse ergeben könnte. Die Struktur des Kaliumdihydrogenphosphats und somit auch im wesentlichen die des isomorphen Ammoniumphosphats wurde im Jahre 1930 von WEST<sup>4)</sup> bestimmt. Es zeigte sich, dass die Wasserstoffatome der  $\text{H}_2\text{PO}_4$ -Gruppen derart liegen, dass je zwei zu verschiedenen  $\text{PO}_4$ -Tetraedern gehörende Sauerstoffe durch ein Wasserstoffatom in Form einer Wasserstoffbrücke gebunden werden. Die Richtungen dieser Brücken sind dabei alle praktisch senkrecht zur *c*-Achse, d. h. der ausgezeichneten Achse des tetragonal-skalenoedrischen Kristalls. Da diese Brücken derart stehen, wird ein Farbstoff, dessen Einlagerung durch Bindung an dieselben stattfindet, sich nur in Netzebenen parallel zur *c*-Achse einlagern. Die Konstitution des Hämatoxylin legt eine Bindung durch Wasserstoffbrücken nahe, und die Mischkristallbildung gelang nun vollständig für Kalium- und Ammoniumdihydrogenphosphat. Der Färbungseffekt steht in guter Übereinstimmung mit dem aus der Strukturanalyse zu erwartenden Resultat, indem nämlich die Farbstoffanlagerung nur in den zur *c*-Achse parallelen Ebenen erfolgt.

Das dielektrische Verhalten homogen gefärbter Kristallteile wurde bestimmt. Für Kaliumphosphat ergab sich eine Verschie-

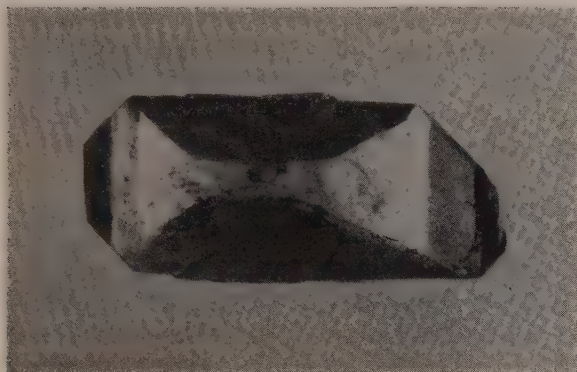
<sup>1)</sup> BUNN, Proc. Roy. Soc. **141**, 567 (1933).

<sup>2)</sup> NEUHAUS, Z. Krist. **105**, 161 (1943).

<sup>3)</sup> SEHERR-THOSS, Poggendorf Annalen **6**, 270 (1879).

<sup>4)</sup> WEST, Z. Krist. **74**, 306 (1930).

bung des Curiepunktes um zwei Grad zu tieferen Temperaturen. Ob dies der direkten Beeinflussung der Hydrogenbindung zuzuschreiben ist oder über den Umweg einer Gitteränderung erfolgt, lässt sich noch nicht mit Bestimmtheit sagen. Aus dem Verhalten des Ammoniumphosphats hingegen kann man auf eine direkte Beeinflussung der Wasserstoffbrücken schliessen. Ammoniumphosphat wird im Gegensatz zu Kaliumphosphat nicht seignetteelektrisch, sondern erleidet bei höheren Temperaturen als der Curiepunkt des Kaliumphosphats eine Ammoniumrotationsumwandlung, ähnlich dem Ammoniumchlorid. Die Temperatur dieser



Umwandlung ist nun sehr empfindlich in bezug auf die Gitterkonstante, wie sich aus anderen Messungen schliessen lässt<sup>1)</sup>.

Mischkristalle von Ammoniumphosphat und Hämatoxylin zeigen nun, dass die Umwandlungstemperatur an der gleichen Stelle liegt wie bei reinem Ammoniumphosphat. Andererseits ist aber bekannt, wie stark sich die Curietemperatur des Kaliumphosphats mit der Gitterkonstanten ändert, und somit lässt sich abschliessend sagen, dass der farbige Nachweis der Wasserstoffbrücken zugleich eine weitere Stütze der Theorie liefert, die in der Wasserstoffbindung eine Ursache der Seignettelektrizität erblickt.

---

#### Entartung des Elektronengases im Siliziumkarbid

von G. BUSCH und H. LABHART, ETH., Zürich.

(Erscheint im Rahmen einer ausführlichen Arbeit in den H.P.A.)

---

<sup>1)</sup> Erscheint demnächst in H.P.A.

**Raketen als Träger wissenschaftlicher Versuchsausrüstungen**

von F. ZWICKY, Pasadena (Kalifornien).

(Erscheint ausführlich im Rahmen einer späteren Publikation in den H.P.A.)

**Zum radioaktiven Zerfall des Elements 43**

von P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN, ETH., Zürich.

Bei Bestrahlung von Molybdän mit Protonen entstehen aus seinen sieben stabilen Isotopen durch (p, n)-Prozesse zahlreiche radioaktive Isotope des in der Natur nicht auftretenden Elements 43. Es werden dabei folgende Halbwertszeiten beobachtet: 52 min, 8 h, 36 h, 104 h, 60 d und 90 d. Bisher stellten wir fest, dass das 52-min-Isotop sich unter Positronenemission in Molybdän umwandelt. Absorptionsmessungen ergaben eine Maximalenergie des Positronenspektrums von 2,5 MeV. Ausserdem wird eine Gammastrahlung von 2,5 MeV ausgesandt, die wahrscheinlich als Folge einer Umwandlung durch Elektroneneinfang emittiert wird. Beim 104-h-Isotop wurde verifiziert, dass die Umwandlung durch K-Einfang vor sich geht. Die charakteristische Röntgenstrahlung wurde beobachtet und die zugehörigen Augerelektronen von 15 keV im  $\beta$ -Spektrographen ausgemessen.

Weitere Messungen sind noch im Gange.

**Harte Gammastrahlung bei der Positronenannihilation**

von P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN, ETH., Zürich.

Die DIRACsche Theorie lässt erwarten, dass bei der Annihilation von Positronen ausser der 0,51 MeV-Gammastrahlung eine schwache, härtere Gammastrahlung mit kontinuierlicher Spektralverteilung auftritt, die von der Annihilation bewegter, noch nicht abgebremster Positronen herrührt.

Wir versuchten, diese harte Annihilationsstrahlung durch Absorptionsmessung der Comptonelektronen nach der BOTHESchen Koinzidenzmethode nachzuweisen. Als Positronenstrahler wurde  $\text{Zn}^{63}$ , dessen Positronenspektrum bis zur Energie von 2,36 MeV reicht, verwendet. Die Positronen wurden in Absorbern aus Materialien verschiedener Kernladungszahl, u. a. Aluminium und Blei, absorbiert. Neben der Kerngammastrahlung des  $\text{Zn}^{63}$  wurde eine Sekundärgammastrahlung beobachtet. Die Zahl der Koinzidenzen

erhöht sich, wenn die Positronen nicht in Aluminium, sondern in Blei absorbiert werden. Um zu unterscheiden, ob diese Erhöhung auf die bei der Abbremsung der Positronen ausgesandte Gammastrahlung oder auf die harte Annihilationsstrahlung zurückzuführen ist, wurde die gemessene Differenzkurve mit der für beide Effekte berechneten verglichen. Sowohl der hierbei auftretende Unterschied wie auch ein Vergleich mit der Bremsstrahlung des Elektronenstrahlers  $UX_2$  zeigen, dass die Intensität der Sekundärstrahlung des  $Zn^{63}$  zu gross ist, um als reine Bremsstrahlung gedeutet zu werden; dagegen besteht grössenordnungsmässige Übereinstimmung in bezug auf Intensität und Härte mit der nach der Theorie von BETHE<sup>1)</sup> berechneten Häufigkeit der harten Zwei- und Einquantenannihilationsstrahlung.

Ein ausführlicher Bericht erscheint in den H.P.A.

### $\beta$ -Zerfall von $A^{41}$

von E. BLEULER, W. BOLLMANN und W. ZÜNTI, ETH., Zürich.

$A^{41}$  zerfällt mit einer Halbwertszeit von  $110 \pm 1$  min in  $K^{41}$ . Die  $\beta$ -Energie wurde von SNELL<sup>2)</sup> zu 1,1 MeV gemessen (Absorption); KURIE, RICHARDSON und PAXTON<sup>3)</sup> finden mit der Wilsonkammer 2 Gruppen von 1,5 und 5 MeV (K-U-Werte). RICHARDSON und KURIE<sup>4)</sup> stellen ausserdem durch Untersuchung der Comptonelektronen in der Wilsonkammer ein  $\gamma$ -Quant von  $1,37 \pm 0,06$  MeV fest (wahrscheinlicher Fehler). Das Zerfallsschema lässt sich auf Grund dieser Messungen nicht mit Sicherheit angeben und wurde nun durch Koinzidenz- und Absorptionsmessungen abgeklärt.

*Halbwertszeit:* Ein Kolben mit  $\frac{1}{2}$  l Inhalt wurde mit pulverisiertem KOH gefüllt und während 3 Stunden mit Neutronen bestrahlt. Nachher wurde der Kolben evakuiert und das KOH zum Schmelzen gebracht, wobei das entstandene Argon ( $K^{41}(n,p)A^{41}$ ) zusammen mit der an den KOH-Körnern adsorbierten Luft entwich. Mittels eines Hg-Hebers wurde das Gas in ein Al-Röhrchen von 0,1 mm Wandstärke gebracht, welches als Quelle diente. Die in mehreren Versuchen gewonnene Abfallkurve zeigt bei einer Halbwertszeit von  $109,4 \pm 1$  min (mittlerer Fehler) kein Anzeichen einer anderen Periode.

<sup>1)</sup> H. A. BETHE, Proc. Royal Soc. A **150**, 129 (1935).

<sup>2)</sup> SNELL, Phys. Rev. **49**, 555 (1936).

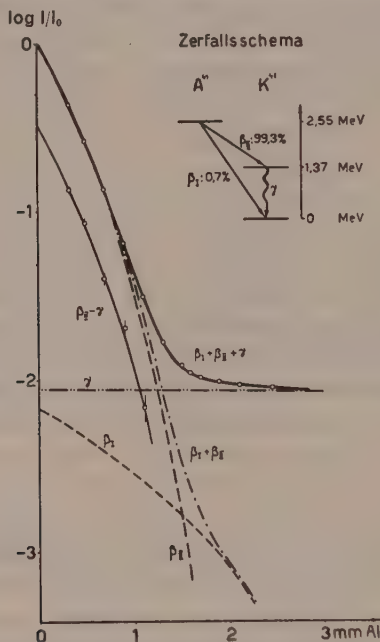
<sup>3)</sup> KURIE, RICHARDSON, PAXTON, Phys. Rev. **49**, 368 (1936).

<sup>4)</sup> RICHARDSON, KURIE, Phys. Rev. **50**, 999 (1936).



**$\beta$ - $\gamma$ -Koinzidenzen:** Die Absorptionskurve der Koinzidenzen verläuft im wesentlichen parallel zu derjenigen der  $\beta$ -Strahlen (Fig.). Der  $\beta$ -Übergang führt also zur Hauptsache auf ein angeregtes Niveau des  $K^{41}$ .

**$\beta$ -Energie:** Bei grossen Absorberdicken zeigt sich eine Andeutung für den direkten Übergang  $\beta_I$  in den Grundzustand, so dass das Zerfallsschema der Nebenfigur anzunehmen ist. Subtrahiert man die Absorptionskurve von  $\beta_I$  mit einer angenommenen Energie von  $2,5_5$  MeV, so erhält man mit Hilfe eines früher angegebenen Verfahrens<sup>1)</sup> für den wahrscheinlicheren Übergang die



Maximalenergie  $E_{II} = 1,18 \pm 0,05$  MeV (Fehlergrenze). Die Übereinstimmung mit dem Wert von SNELL und der energieärmeren Gruppe von KURIE, RICHARDSON und PAXTON ist befriedigend. Dagegen muss ihre hochenergetische Gruppe von 4–5 MeV dem  $Cl^{38}$  zugeschrieben werden, das bei ihrer Herstellungsart ( $A^{40}(d,p)A^{41}$ ) durch den Prozess ( $A^{40}(d,\alpha)Cl^{38}$ ) entstehen konnte.

**$\gamma$ -Energie:** Eine rohe Kontrollmessung (Absorption der Sekundärelektronen) ergibt  $E_\gamma = 1,3 \pm 0,2$  MeV (Fehlergrenze). Aus der  $\gamma$ -Intensität folgt, dass bei einem Zerfall in das angeregte Niveau nur ein einziges  $\gamma$ -Quant ausgesandt wird.

<sup>1)</sup> BLEULER, ZÜNTI, H.P.A. 19, 375 (1946).

**Zerfallsschema:** Der Übergang in den Grundzustand  $E_I = 1,18 + 1,37 = 2,55 \pm 0,2$  MeV ist vermutlich 2-fach verboten ( $\log f \cdot t = 8,6$ ), jener in das angeregte Niveau erlaubt ( $\log f \cdot t = 5,0$ ).

**Masse von  $K^{41}$ :** Nach dem Isotopenbericht 1942 ist die Masse von  $A^{41}$ : 40,97740 (ohne Fehlerangabe). Daraus berechnet sich diejenige von  $K^{41}$  zu 40,97466.

**K-Einfang von  $K^{40}$ :** Von  $A^{40}$  aus über  $A^{41}$ ,  $K^{41}$ ,  $Ca^{41}$ ,  $Ca^{40}$ ,  $K^{40}$  bestimmt sich die minimale Energietönung beim K-Einfang  $K^{40} \rightarrow A^{40}$  zu  $Q = 2,1$  MeV. Diese Energietönung genügt für das bei  $K^{40}$  beobachtete  $\gamma$ -Quant von 1,54 MeV, das diesem Prozess zugeordnet wird<sup>1</sup>).

### $\gamma$ -Strahlung von $N^{16}$

von E. BLEULER, P. SCHERRER, M. WALTER und W. ZÜNTI, ETH., Zürich.

Durch Messung der Absorption der Sekundärelektronen und Untersuchung der Paare in der Wilsonkammer werden beim  $\beta$ -Zerfall des  $N^{16}$  zwei  $\gamma$ -Quanten von 6,2 und 6,7 MeV festgestellt. Die Energie der mit diesen gekoppelten  $\beta$ -Spektren wird mittels Koinzidenzmessungen bestimmt und daraus die gesamte Zerfallsenergie zu 10,3 MeV, mit Fehlergrenzen von 0,7 MeV, berechnet. Das Niveauschema des Endkerns  $O^{16}$ , das auf Grund der Reaktion  $F^{19} (p, \alpha) O^{16}$  aufgestellt worden ist, wird bestätigt und erweitert.

Die Arbeit erscheint demnächst in den H.P.A.

### Zerfallsenergie von $O^{19}$ , $Na^{25}$ und $K^{42}$

von E. BLEULER und W. ZÜNTI, ETH., Zürich.

Die  $\beta$ -Spektren von  $O^{19}$ ,  $Na^{25}$  und  $K^{42}$  werden mit Hilfe von Absorptions- und Koinzidenzmessungen untersucht. Die Zerfallsenergien betragen 4,5, 3,7 und 3,5 MeV. Alle Spektren sind komplex, mit mindestens einem angeregten Zustand des Endkerns bei  $O^{19}$  (1,6 MeV) und  $Na^{25}$  (1,0 MeV), mindestens zwei bei  $K^{42}$  (1,4 und 2,0 MeV). Die Halbwertszeit von  $O^{19}$  beträgt 27 Sek. Die Zuordnung von  $Na^{25}$  wird durch chemische Trennung bestätigt.

Die Arbeit erscheint demnächst in den H.P.A.

### Etude des forces intermoléculaires par diffusion des neutrons thermiques

par J. ROSSEL, ETH., Zürich.

L'influence des liaisons chimiques sur la diffusion des neutrons lents, étudiée théoriquement dans quelques cas, laisse entrevoir la possibilité d'une méthode d'investigation des forces intermoléculaires fondée sur ce phénomène. On peut s'attendre à des effets

<sup>1</sup>) O. HIRZEL und H. WÄFFLER, H. P. A. 19, 216 (1946).

mesurables surtout pour les substances de faible masse atomique pour lesquelles la transmission de moment cinétique par le neutron est considérable. A ce point de vue, les liaisons où interviennent des atomes d'hydrogène occupent une position privilégiée.

Dans le but d'étudier le principe et l'application du procédé, nous avons effectué sur les substances  $N_2$ ,  $H_2O$  et  $KH_2PO_4$  une série de mesures de diffusion de neutrons thermiques de température normale pour un domaine de températures allant de  $290^0$  à  $20^0$  K.

Pour les mesures à basses températures, le diffuseur est placé à l'intérieur d'un récipient Dewar métallique spécialement étudié et employé en connexion avec un liquéfacteur d'hydrogène pour les températures inférieures à  $60^0$  K.

Pour  $N_2$ <sup>1)</sup> la section de-diffusion totale par atome à l'état gazeux reste constante et égale à  $11,0 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup> (la section de capture est d'après LAPOINTE et RASETTI de  $1,2 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup>). Cette valeur tombe brusquement à la liquéfaction et diminue ensuite avec la température. La transition liquide-solide n'indique aucun effet mais par contre pour la transition (du second ordre) intervenant sur la phase solide à  $35,4^0$  K, la section de diffusion remonte de 8% environ.

La section de diffusion moléculaire de  $H_2O$  ( $85,5 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup> pour le liquide à  $290^0$  K) se comporte de façon analogue à  $N_2$  pour le passage liquide-solide et présente une variation de 14% env. pour le solide entre  $-79$  et  $-196^0$  C. Un calcul approximatif semble indiquer que les molécules  $H_2O$  possèdent dans le cristal une certaine liberté de rotation.

Le cristal de  $KH_2PO_4$  (système tétragonal) a des propriétés d'électricité seignette caractérisées par l'apparition au point de Curie à  $-150^0$  C d'une polarisation spontanée dirigée suivant l'axe singulier  $c$  et qu'on attribue à la liaison-hydrogène du cristal.

Une série de mesures de  $\sigma$  suivant deux axes différents du monocristal ( $a$  et  $c$ ) au-dessus et au-dessous du point de Curie semblent indiquer, quand on les interprète quantitativement, une liaison H anisotrope au-dessus mais pratiquement isotrope au-dessous du point de transition. De plus les résultats obtenus permettent d'indiquer pour longueur d'onde caractéristique de la liaison une valeur voisine de  $15 \mu$ , donc une liaison nettement plus faible que la liaison O—H ordinaire.

(Un compte-rendu détaillé de ces mesures paraîtra prochainement dans H.P.A.)

<sup>1)</sup> Pour  $N_2$ , les mesures ont été effectuées en collaboration avec A. GIBERT et R. KELLER.

## Untersuchungen an einem linearen Verstärker

VON E. BALDINGER, W. HÄLG, P. HUBER und A. STEBLER, Basel.

Zur Untersuchung von Kernumwandlungen haben wir einen linearen Verstärker mit Ionisationskammer und Eichgerät gebaut. Als 1. Stufe findet eine ausgesuchte Hochfrequenzpentode der Type 6C6 Verwendung, die mit freiem Gitter und sehr niedrigen Spannungen betrieben wird (Heizspannung 2 V, Anodenspannung 8 V, Schirmgitterspannung 14 V, Anodenstrom  $9 \mu\text{A}$ ). Bei diesen Arbeitsbedingungen lässt sich eine 15fache Spannungsverstärkung erreichen. Der Ohmsche Eingangswiderstand bestimmt sich aus der Gitterstromcharakteristik zu  $10^{10} \Omega$ . Um die Eingangskapazität klein zu halten, ist die 1. Röhre direkt mit der Ionisationskammer zusammengebaut. Die Eingangskapazität der 1. Stufe mit Ionisationskammer und der Zuleitung beträgt 20 pF.

Der Störpegel der 1. Stufe wurde genauer untersucht. Das Widerstandsrauschen des Gitterkreises, verursacht durch den Isolationswiderstand, liefert im verstärkten Frequenzbereich wegen der Eingangskapazität keinen merklichen Beitrag zum Untergrund. Ebenso sind das Widerstandsrauschen des Anodenwiderstandes und der Schroteffekt des Anodenstromes sehr klein. Als einzige grundsätzliche und wesentliche Störquelle ist der Schroteffekt des Gitterstromes ( $4 \cdot 10^{-12} \text{ A}$ ) zu betrachten. Aus der Gitterstromcharakteristik, der Eingangskapazität und dem übertragenen Frequenzbereich haben wir den Störpegel der 1. Stufe für einige Röhren berechnet. Der experimentell bestimmte Wert war indessen bei den untersuchten Röhren 2 bis 3mal grösser als der berechnete. Dieser grössere Störpegel wird vermutlich durch die ungenügende Isolation zwischen Steuergitter und Schirmgitter verursacht. Bei der angelegten Schirmgitterspannung fliesst ein Kriechstrom von einigen  $10^{-12} \text{ A}$ . Bei zeitlichen Schwankungen des Isolationswiderstandes entsteht so eine weitere, wenn auch nicht prinzipielle Störquelle.

Der auf die 1. Stufe folgende Verstärker ist für vollständigen Netzbetrieb gebaut. Übertragen werden alle Frequenzen von 10 Hz bis 8000 Hz. Um ein möglichst gutes Verhältnis zwischen Nutzsignal und Störpegel zu erzielen, muss die Frequenzcharakteristik des Verstärkers dem Eingangsimpuls angepasst werden. Mit Hilfe von zwei umschaltbaren RC-Filtern ist innerhalb der angegebenen Grenzen das übertragene Frequenzband einstellbar. Der Einfluss der Veränderung von Röhrendaten und Speisespannung wird mit einer ca. 70fachen Gegenkopplung auf ein unschädliches Mass



herabgedrückt. Die Gegenkopplung verhindert ausserdem die störenden nichtlinearen Verzerrungen der Ausgangsstufe.

Der Störpegel des Verstärkers ohne 1. Stufe, dessen Spannungsverstärkung 5 Millionen beträgt, wird nur durch das Widerstandsrauschen des Eingangskreises verursacht. Der berechnete Störpegel stimmte innerhalb der Messgenauigkeit von 10% mit dem experimentell gefundenen Wert überein. Erschütterungen, Störspannung der Netzgeräte usw. verursachen somit keinen merklichen Beitrag zum Untergrund.

Die Kernreaktionen werden in einer Ionisationskammer mit ebenen Platten erzeugt, die eine Teilkapazität von ca. 1 pF und einen Plattenabstand von 1 cm aufweisen. Zur Sammlung der Ionen

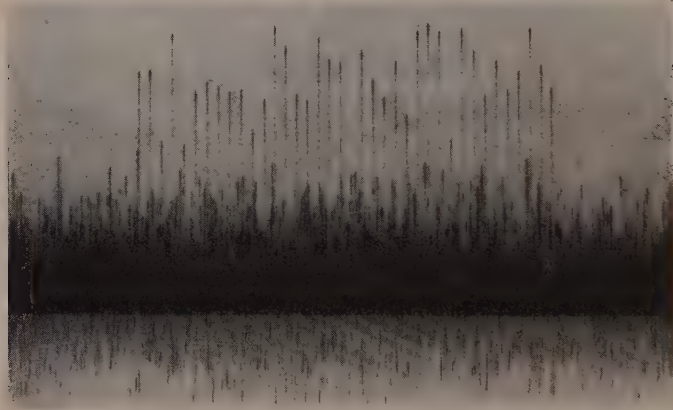


Fig. 1.

wird eine Spannung von 10000 Volt an die Ionisationskammerplatten angelegt. Abstandsänderungen der Platten von nur  $10^{-8}$  cm bewirken bereits eine Vergrösserung des Störpegels, vorausgesetzt dass sie mit einer Frequenz erfolgen, die vom Verstärker übertragen wird. Durch geeignete Konstruktion und Verwendung keramischen Isoliermaterials ist es gelungen, eine Eigenfrequenz der Platten und ihrer Befestigung von über 10000 Hz zu erreichen, wodurch die Kammer weitgehend erschütterungsunempfindlich wird.

Zur Eichung werden über eine eingebaute Teilkapazität Influenzladungen bekannter Grösse auf die Auffängerelektrode der Ionisationskammer gebracht. Die Eichkapazität ist mit einem auf die Kammer aufsteckbaren Schutzringkondensator auf 2% genau bestimmbar. Ein automatisch arbeitendes Eichgerät gibt Spannungsschüsse bekannter Höhe auf die Eichkapazität. Die Anstiegs-

zeit der Spannungsimpulse des Eichgerätes ist einstellbar und kann so der Sammelzeit der Ionen angepasst werden.

In Fig. 1 sind Eichimpulse mit einer Influenzladung von  $2,05 \cdot 10^{-16}$  Coulomb dargestellt, was bei einem mittleren Energieverlust von 35 eV pro Ionenpaar einer Teilchenenergie von 44,8 kV entspricht.

---

### Die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches in schnellen Zählrohren in Abhängigkeit von Druck und Spannung

von F. ALDER und P. HUBER, Basel.

(Erscheint demnächst in den H.P.A.)

---

### Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons

von O. HIRZEL und H. WÄFFLER, ETH., Zürich.

Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma(a, b)$  einer Kernumwandlung wird allgemein als Produkt zweier Faktoren, nämlich 1. des Wirkungsquerschnitts  $\sigma_a$  für die Bildung des Zwischenkerns unter Einfang des Teilchens  $a$  und 2. der Wahrscheinlichkeit  $W_b$  für den Zerfall des Zwischenkerns unter Emission eines bestimmten Nukleons  $b$ , dargestellt. Diese Darstellung beruht auf der Annahme, dass sich die Anregungsenergie des Zwischenkerns auf das gesamte Kernsystem gleichmässig verteilt, *bevor* die Emission des Nukleons  $b$  stattfindet. Für den Fall der Kernumwandlungen durch materielle Teilchen, insbesondere durch Neutronen, existieren experimentelle Tatsachen, welche diese Annahme stützen. Für Kernprozesse, welche durch  $\gamma$ -Strahlen ausgelöst werden (Kernphotoeffekt), fehlte dagegen bis jetzt das experimentelle Beweismaterial. Man hat gleichwohl dieselben Vorstellungen auch auf den Kernphotoeffekt übertragen.

Eine Möglichkeit zu ihrer experimentellen Prüfung bietet die Untersuchung des Wirkungsquerschnittsverhältnisses für die konkurrierenden Prozesse  $(\gamma, p)$  und  $(\gamma, n)$ . Da der Einfangsquerschnitt  $\sigma_a$  für beide Prozesse identisch ist (sofern sie am gleichen Kern erfolgen), so muss das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte gleich dem Verhältnis  $W_p/W_n$  der Wahrscheinlichkeiten für die Emission eines Protons bzw. Neutrons aus dem betreffenden Kern sein. Weil das Proton durch den Potentialwall des Coulombfeldes am Austritt behindert wird, muss dieses Verhältnis  $\ll 1$  sein, und zwar um so kleiner, je grösser die Kernladung ist.

In einer früheren Mitteilung<sup>1)</sup> haben wir den experimentellen Wert des Verhältnisses  $\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, n)$  an  $\text{Cd}^{111}$  mitgeteilt. Das Resultat der analogen Messung an Si, Cr, Se,  $\text{Cd}^{113}$  ist zusammen mit dem früheren in Tabelle 1, Spalte 3, dargestellt.

Tabelle 1.

Zusammenstellung der Wirkungsquerschnittsverhältnisse.

$(\gamma, p)$	$(\gamma, n)$	$\sigma(\gamma, p)/\sigma(\gamma, n)_{\text{exp}}$	$Wp/Wn_{\text{theoret}}$
$\text{Si}^{30} - \text{Al}^{29}$	$\text{Si}^{28} - \text{Si}^{27}$	2,2	—
$\text{Cr}^{53} - \text{V}^{52}$	$\text{Cr}^{50} - \text{Cr}^{49}$	0,4	$4,4 \cdot 10^{-3}$
$\text{Se}^{77} - \text{As}^{76}$	$\text{Se}^{82} - \text{Se}^{81}$	0,04	$3,2 \cdot 10^{-4}$
$\text{Cd}^{111} - \text{Ag}^{110}$	$\text{Cd}^{115} - \text{Cd}^{114}$	0,03	$1 \cdot 10^{-5}$ <sup>2)</sup>
$\text{Cd}^{113} - \text{Ag}^{112}$	$\text{Cd}^{115} - \text{Cd}^{114}$	0,04 <sub>5</sub>	$1,8 \cdot 10^{-5}$

Der Nachweis dieser Prozesse erfolgte auf Grund der Radioaktivität des bei der Umwandlung entstehenden Kerns. Die Messmethode ist in einer früheren Arbeit ausführlich beschrieben worden<sup>3)</sup>. Das Wirkungsquerschnittsverhältnis kann deshalb nicht am gleichen Isotop bestimmt werden, sondern nur an verschiedenen Isotopen des gleichen Elements. Da jedoch die Messungen bei allen bis jetzt untersuchten Stoffen<sup>3)</sup> für die verschiedenen Isotope ein und desselben Elementes innerhalb der Fehlergrenzen gleiche Wirkungsquerschnitte für den  $(\gamma, n)$ -Prozess ergeben, so kann man mit Bestimmtheit annehmen, dass auch das auf das gleiche Ausgangsisotop bezogene Wirkungsquerschnittsverhältnis sich von dem in Tabelle 1 angegebenen nicht stark unterscheidet.

Die  $(n, p)$ -Prozesse, welche infolge der natürlichen Deuteriumbeimengung des Protonenstrahls als Nebenreaktionen auftreten, können unter Umständen auf den gleichen Endkern führen wie der  $(\gamma, p)$ -Prozess. Sie liefern vor allem bei den leichten Elementen mitunter einen beträchtlichen Beitrag zur Gesamtaktivität. Ihr

<sup>1)</sup> H.P.A. **19**, 214 (1946).

<sup>2)</sup> In der unter <sup>1)</sup> zitierten Mitteilung wurden die Bindungsenergien von Proton und Neutron für den Kern  $\text{Cd}^{111}$  als gleich angenommen. Aus der Umwandlungsenergie  $\text{Ag}^{110} \rightarrow \text{Cd}^{110}$ :  $E_{\beta^-} = 2,8$  MeV ergibt sich jedoch, dass die Bindungsenergie des Protons um  $\sim 2,5$  MeV grösser ist, als diejenige des Neutrons. Dadurch erniedrigt sich das theoretische Wirkungsquerschnittsverhältnis gegenüber früher etwa um einen Faktor 40.

<sup>3)</sup> O. HUBER, O. LIENHARD und H. WÄFFLER, H.P.A. **17**, 196 (1944). In dieser Arbeit werden für die untersuchten Isotope die relativen Ausbeuten des Kernphotoeffekts angegeben. Zu den relativen Wirkungsquerschnitten gelangt man, indem man die Selbstabsorption der  $\beta$ -Teilchen im aktivierten Präparat berücksichtigt.

Anteil wurde durch Bestrahlung mit Li+D-Neutronen gesondert bestimmt und von der gemessenen gesamten Aktivität in Abzug gebracht<sup>1)</sup>).

In Tabelle 1, Spalte 4, sind die theoretischen Werte für das Verhältnis der Emissionswahrscheinlichkeiten für Protonen bzw. Neutronen, die sich auf Grund der Rechnungen von WEISSKOPF und EWING ergeben<sup>2)</sup>, zusammengestellt. Diese Werte sind unter der Annahme einer Bindungsenergie von  $\approx 8$  MeV für das austretende Proton bzw. Neutron berechnet. Der Vergleich der Spalten 3 und 4 zeigt, dass die experimentellen Werte etwa 100- bis 3000mal grösser sind als die theoretischen.

Dieses Ergebnis zwingt zum Schluss, dass der für Kernumwandlungen durch materielle Teilchen gültige Mechanismus sich nicht ohne weiteres auf den Kernphotoeffekt übertragen lässt. Die im Kern enthaltenen Protonen, welche vermöge ihrer Ladung mit dem einfallenden  $\gamma$ -Quant in Wechselwirkung treten, können offenbar den Kern verlassen, *bevor* sich die Anregungsenergie des Zwischenkerns gleichmässig auf alle Nukleonen verteilt hat. Die ausführliche Arbeit erscheint demnächst in den H.P.A.

### Über die Mehrfachquanten in der Planckschen Strahlung

von M. WOLFKE, Techn. Hochschule Warszawa.

Bei der Ableitung des PLANCKSchen Strahlungsgesetzes durch BOSE<sup>3)</sup>, unter Anwendung der sogenannten BOSE-EINSTEINSchen Statistik auf die EINSTEINSchen Lichtquanten, treten im Phasenraum mehrfach besetzte Phasenzellen auf, in denen sich  $i$  Quanten  $h\nu$  befinden, wo  $i$  eine beliebige ganze Zahl ist.

Was bedeuten nun  $i$  Quanten  $h\nu$  in einer Phasenzelle? Die Phasenzelle in der BOSE-EINSTEINSchen Statistik besitzt das Phasenvolumen  $h^3$ . Nach der HEISENBERGSchen Unschärferelation müssten derartige Quanten, sowohl in bezug auf die Raumkoordinaten als auch in bezug auf die Impulskoordinaten, voneinander ununterscheidbar sein. Sie sollten also ein räumlich zusammengedrängtes Quantenpaket von der Energie  $i h\nu$  bilden, das wir als „Mehrfachquant“ bezeichnen wollen.

<sup>1)</sup> Die Neutronenbestrahlung wurde von Dr. BLEULER und Dr. ZÜNTI am Tensator durchgeführt, wofür wir ihnen auch an dieser Stelle bestens danken.

<sup>2)</sup> V. F. WEISSKOPF und D. H. EWING, Phys. Rev. **57**, 472 (1940). (Die Ergebnisse dieser Rechnungen gelten nur für Kerne der Massenzahl  $\geq 50$ .)

<sup>3)</sup> BOSE, ZS. f. Phys. **26**, 178 (1924).



Auf die Möglichkeit solcher Mehrfachquanten in der PLANCKschen Strahlung habe ich schon früher von einem anderen Standpunkt aus hingewiesen<sup>1)</sup>.

Unter Zugrundelegung der Mehrfachquantenhypothese lässt sich die PLANCKsche Strahlung als ein Gemisch von Photonengasen mit den Quantenenergien  $h\nu$ ,  $2h\nu$ , ...,  $ih\nu$ , .... auffassen.

Wir wollen nun unter obiger Voraussetzung das mittlere Quadrat der Energiedichteschwankungen  $\bar{\varepsilon}^2$  berechnen.

Wie ich das seinerzeit gezeigt habe<sup>2)</sup>, sind die Teilstrahlungen, die den verschiedenen Mehrfachquanten entsprechen, thermodynamisch voneinander unabhängig, da ihre Entropiedichten sich einfach summieren. Demnach können wir für das mittlere Quadrat der gesamten Energiedichteschwankungen der PLANCKschen Strahlung schreiben:

$$\bar{\varepsilon}^2 = \sum_{i=1}^{i=\infty} \varepsilon_i^2, \quad (1)$$

wo  $\bar{\varepsilon}_i^2$  das mittlere Quadrat der Energiedichteschwankungen der Teilstrahlung der Mehrfachquanten  $ih\nu$  bedeutet, was bekanntlich

$$\bar{\varepsilon}_i^2 = p_i (ih\nu)^2 \quad (2)$$

sein wird, wo  $p_i$  die Zahl der mit  $i$  Quanten besetzten Phasenzellen, also die pro Volumeneinheit und Frequenzintervalleinheit Zahl  $n_i$  der Mehrfachquanten  $ih\nu$  bedeutet.

Die Zahl  $p_i$  können wir in folgender einfacher Weise berechnen. Die gesamte Strahlungsdichte  $u$  wird offenbar sein gleich:

$$u = \sum_{i=1}^{i=\infty} p_i (ih\nu),$$

andererseits aber lässt sich bekanntlich die PLANCKsche Strahlungsdichte in eine Reihe von WIENSchen Strahlungen:

$$u = \sum_{i=1}^{i=\infty} \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} e^{-\frac{ih\nu}{kT}}$$

entwickeln. Beide dieser Reihen sind eindeutig, und daher müssen die entsprechenden Glieder der beiden Reihen einander gleich sein, woraus folgt:

$$n_i = p_i = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} \cdot \frac{e^{-\frac{ih\nu}{kT}}}{i}. \quad (3)$$

<sup>1)</sup> M. WOLKE, Verh. d. D. Phys. Ges. **15**, 1123, 1215 (1913); Phys. ZS. **15**, 308, 463 (1914); ZS. f. Phys. **61**, 725 (1930).

<sup>2)</sup> M. WOLKE, Phys. ZS. **22**, 375 (1921); Arch. Sci. phys. et nat. (5) **3**, 320 (1921).

Indem wir den Ausdruck (3) in die Gleichung (2) und die Summe (1) einsetzen, so erhalten wir:

$$\overline{\varepsilon^2} = \frac{8\pi h^2 \nu^4}{c^3} \sum_{i=1}^{i=\infty} i \cdot e^{-\frac{i h \nu}{kT}},$$

was nach einer einfachen Summation und Multiplizieren des Nenners und Zählers mit  $e^{\frac{2 h \nu}{kT}}$  ergibt:

$$\overline{\varepsilon^2} = \frac{8\pi h^2 \nu^4}{c^3} \cdot \frac{e^{\frac{h \nu}{kT}}}{\left(e^{\frac{h \nu}{kT}} - 1\right)^2}.$$

Im obigen Ausdruck eliminieren wir  $e^{\frac{h \nu}{kT}}$  mit Hilfe des PLANCK'schen Strahlungsgesetzes, indem wir die Strahlungsdichte  $u$  einführen und nach einfacher Rechnung erhalten:

$$\overline{\varepsilon^2} = h \nu \cdot u + \frac{c^3 \cdot u^2}{8\pi \nu^2}. \quad (4)$$

Dieser Ausdruck (4) ist identisch mit dem bekannten Schwingungsgesetz der Hohlraumstrahlung, das seinerzeit von EINSTEIN<sup>1)</sup> abgeleitet worden ist und bekanntlich direkt auf thermodynamischem Wege aus dem PLANCK'schen Strahlungsgesetz folgt. Damals wurde das erste Glied des Ausdruckes (4) als von den Dichteschwankungen der Photonen  $h \nu$  herrührend betrachtet, hingegen das zweite Glied wurde als durch die optischen Interferenzschwankungen hervorgerufen gedeutet<sup>2)</sup>, was durchaus unbefriedigend war.

Mit der Annahme von Mehrfachquanten folgt hier das Schwingungsgesetz (4) direkt und eindeutig aus der Lichtquantenhypothese. Das erste Glied bedeutet das mittlere Quadrat der Energiedichteschwankungen der Strahlung im Falle, dass die ganze Energie in einzelnen  $h \nu$  Quanten enthalten wäre, das zweite Glied hingegen ist ein Korrekturglied, dadurch bedingt, dass die Quanten  $h \nu$  teilweise in Mehrfachquanten vereinigt sind.

<sup>1)</sup> A. EINSTEIN, Phys. ZS. **10**, 185 (1909).

<sup>2)</sup> H. A. LORENTZ, Les théories statistiques en thermodynamique, 114, Leipzig 1916.

### **Sulla presenza nella radiazione cosmica al livello del mare di particelle non elettroniche lente**

Nota di G. COCCONI e M. ADDARIO, Istituto di Fisica dell'Università, Catania.

Con un dispositivo di contatori collegati a circuiti di coincidenze ed anticoincidenze, si sono registrate al livello del mare particelle appartenenti alla radiazione cosmica, aventi le seguenti caratteristiche:

secondarie di radiazione non ionizzante generate in uno schermo di 1,2 cm di Pb,

non producenti secondari in detto schermo,

capaci di attraversare spessori di (1,2+2,5), (1,2+5), (1,2+7,5) cm Pb.

Le particelle che soddisfano a questi requisiti non possono essere elettroni secondari di fotoni della componente molle, ma devono essere particelle di massa maggiore di quella elettronica (mesoni o protoni) secondarie di fotoni o di altra radiazione neutra.

I risultati delle esperienze mostrano che le particelle in questione sono fermate da spessori minori di 10 cm Pb e costituiscono circa il 2-3‰ della radiazione totale ionizzante incidente sul telescopio verticale registratore.

Questi risultati sono da mettersi in relazione con quelli ottenuti da REGENER<sup>1)</sup> secondo cui al livello del mare esisterebbe una radiazione non elettronica lenta (protoni?) secondaria di una radiazione non ionizzante (fotoni?) la quale, sotto 6 cm Pb, avrebbe una frequenza del 3% circa della radiazione totale.

Le nostre misure confermano l'esistenza al livello del mare di secondari lenti non elettronici generati da radiazione non ionizzante, ma con frequenze circa 10 volte inferiori a quelle registrate da REGENER.

Le nostre esperienze non ci permettono di ottenere indicazioni sul tipo della radiazione non ionizzante e della secondaria non elettronica lenta. Le misure di ROSSI e JANOSSY<sup>2)</sup> le quali porterebbero ad escludere la presenza al livello del mare di radiazione non elettronica, secondaria di non ionizzante, non si devono ritenere in contraddizione con i nostri risultati, in quanto non si riferiscono a particelle lente, ma a particelle capaci di attraversare più di 12 cm Pb.

<sup>1)</sup> Phys. Rev. **64**, 250 (1943).

<sup>2)</sup> Phys. Rev. **58**, 761, (1940).

## Die Paaremission des ThC''

von H. Bradt\*), J. Halter, H. G. Heine\*\*) und P. Scherrer.

(18. Juni 1946.)

*Zusammenfassung.* Die Untersuchung der Paaremission des ThC'', über die im folgenden berichtet wird, stellt eine Fortsetzung früherer Arbeiten über die Emission positiver Teilchen durch  $\beta^-$ -Strahler dar. Die Problemstellung ist in einem früher erschienenen zusammenfassenden Bericht (BRADT, HEINE und SCHERRER<sup>1)</sup>) dargelegt. Verschiedene Untersuchungen hatten gezeigt, daß eine so häufige Emission von Positronen durch die  $\beta^-$ -Strahler UX<sub>2</sub>, P<sup>32</sup> und RaE, wie sie die Wilsonkammer-Aufnahmen zeigen, auf keine andere Art nachzuweisen ist (BRADT<sup>2</sup>), HEINE<sup>3</sup>). Einzig Koinzidenzmessungen mit ThC'' schienen die Ergebnisse der Wilsonkammer-Untersuchungen, welche auch bei ThC'' für eine verhältnismässig sehr grosse Wahrscheinlichkeit der Paaremission sprachen, zu stützen.

Wir haben nun die Untersuchung der  $e^+$ -Emission des ThC'' nach verschiedenen voneinander unabhängigen Methoden erneut vorgenommen, nämlich

- 1) mit dem *magnetischen Halbkreisspektrographen* (vgl. ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODAEV<sup>4</sup>),
- 2) mittels *Koinzidenzmessungen* unter Verwendung von zwei, bzw. drei in Koinzidenz geschalteten Zählrohren,
- 3) mit einer *Wilsonkammer*, deren Expansion durch Koinzidenzen zweier in die Kammer eingebauter Zählrohre gesteuert wird.

Die Resultate dieser Messungen zeigen, dass auch bei ThC'' wie bei UX<sub>2</sub> die fragliche  $e^+$ -Emission wohl bei Wilsonkammer-Aufnahmen, nicht aber mit andern Methoden gefunden wird. Namentlich ist uns nunmehr eine befriedigende Deutung der von BENEDETTI<sup>5</sup>) und uns mit ThC'' ausgeführten Koinzidenzmessungen gelungen. Ferner wird nachgewiesen, dass die in der Wilsonkammer sichtbaren positiven Spuren nicht von Teilchen herrühren, die in einem Mehrfach-Emissionsprozess, z. B. als Partner von Paaren, ausgesendet werden. Dagegen werden bei den Wilsonkammer-Aufnahmen erneut positive Spuren in ähnlichem Ausmass wie früher festgestellt, so dass die Frage, ob eine „anomal“ häufige Emission von positiven Teilchen durch  $\beta^-$ -Strahler vorhanden ist, noch immer nicht endgültig beantwortet werden kann.

### I. Messung des Th(C + C'')-Positronenspektrums mit dem magnetischen $\beta$ -Spektrographen.

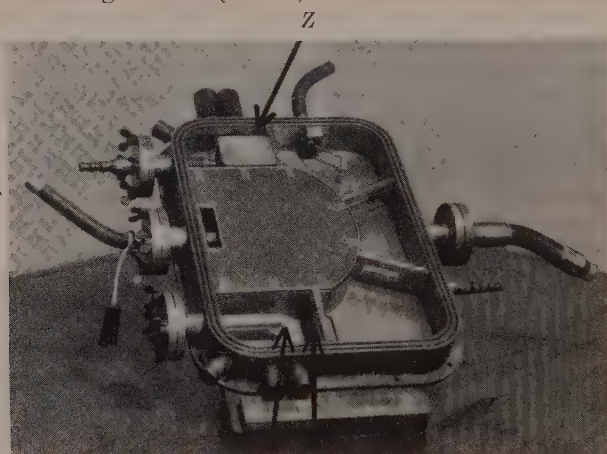
Die direkteste Methode zur Bestimmung sowohl der totalen Intensität als auch der Energieverteilung der beim  $\beta$ -Zerfall des Th(C+C'')emittierten Positronen ist die Ausmessung des Th(C+C'')-Positronenspektrums mit dem magnetischen Halbkreisspektrographen. Elektronen und Positronen werden im magnetischen Feld

\*) Jetzt Purdue University, Lafayette, Indiana, U.S.A.

\*\*) Jetzt Department of Physics Memorial Hospital, New York, U.S.A.



getrennt und die Positronen eines bestimmten Energieintervalls auf den Spalt eines zwei in Koinzidenz geschaltete Zählrohre enthaltenden Kästchens fokussiert. Da die Intensität des  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$ -Positronenspektrums ausserordentlich viel kleiner ist als diejenige des Elektronenspektrums, ist es, zur äussersten Herabsetzung des Untergrunds, von grossem Vorteil, für die Registrierung der Positronen anstelle eines einzigen Zählrohrs ein Koinzidenzzählrohrpaar zu verwenden (ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODAEW<sup>4</sup>). Ein im Spektrographen angebrachtes Blendensystem fängt die an den Wänden gestreuten Elektronen ab. Bei einem Bahnradius von  $\varrho = 10,0$  cm konnte zwischen Quelle und Zählrohrpaar eine 15 cm starke Bleischicht angebracht werden, womit der durch die intensive harte  $\gamma$ -Strahlung des  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$  bewirkte Koinzidenzuntergrund



$P \quad F_1$   
Fig. 1.

*Magnetischer Halbkreispektrograph.*

$P$ : Sitz des Präparats

$F_1$ : Erste Blende (auswechselbar)

$Z$ : Zählrohrkästchen mit Koinzidenzzählrohren.

genügend herabgesetzt wurde. Ein früher beschriebener Spektrograph (BRADT, HEINE und SCHERRER<sup>6</sup>) wurde zu diesem Zweck entsprechend abgeändert (Fig. 1). Die für die Messungen verwendeten  $\text{Th}(\text{B}+\text{C}+\text{C}'')$ -Präparate einer Intensität von ca. 10 m Curie wurden jeweils auf der äussersten Kante einer Metallfolie als aktiver Niederschlag gesammelt.

Das  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$ -Positronenspektrum ist mit dem magnetischen Halbkreispektrographen von ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODAEW<sup>4</sup>) ausgemessen worden. Die Positronen wurden von ihnen durch ein Paar in Koinzidenz geschalteter Zählrohre nachgewiesen,

die vom übrigen Spektrographen durch eine Nitrozellulosefolie von  $3\ \mu$  Dicke getrennt sind. In Bestätigung des von JAEGER und HULME<sup>7)</sup> berechneten theoretischen Werts wurde von ALICHANOW und Mitarbeitern die gesamte Positronenintensität zu

$$N^+ \approx 2 \cdot 10^{-4} e^+/\text{Zerfall ThB}$$

bestimmt. Das Positronenspektrum zeigt bei 1,6 MeV einen scharfen Abfall, wie es für das Spektrum der von der Paarkonversion der 2,62 MeV-ThC''-Linie herrührenden Positronen zu erwarten ist. In Richtung abnehmender Energie erstrecken sich die Messungen bis 0,3 MeV. Unterhalb etwa 0,5 MeV scheint die Intensität des Spektrums gegen den Nullpunkt zu abzufallen.

Durch unsere Messungen sollte in erster Linie dieser letztere Punkt nachgeprüft werden, da nach den angeführten Wilsonkammeruntersuchungen (CHADWICK, BLACKETT und OCCHIALINI<sup>8)</sup>, HEINE<sup>3)</sup>) etwa unterhalb 0,5 MeV ein rapider Anstieg des  $e^+$ -Spektrums gegen kleinere Energiewerte hin zu erwarten war.

Um auch noch bei sehr kleinen Energien das unverfälschte Spektrum zu messen, wird das die Koinzidenzzählrohre enthaltende Kästchen mit einer Zaponlackfolie abgeschlossen, deren Dicke nur  $0,3\ \mu$  beträgt. Diese extrem dünne Zählrohr-Abschlussfolie ermöglicht es, das Elektronenspektrum bis zu Energien von 15 keV hinunter zu registrieren. Die geringfügige Korrektur, welche infolge Streuung der Elektronen in der Eintrittsfolie für die kleinsten Energiewerte an der Zahl der gemessenen Koinzidenzen anzubringen ist, wurde durch Ausmessung der weichen  $\beta$ -Linien des Th(B+C+C'') — der A-Linie bei 24,7 keV, der F-Linie bei 147,7 keV usw. — und Vergleich der Messwerte mit den Resultaten von FLAMMERSFELD<sup>9)</sup> bestimmt.

Das Auflösungsvermögen des  $\beta$ -Spektrographen  $\frac{\Delta H_Q}{H_Q}$  wurde bei einem Zählrohrspalt von 1 mm Breite und einer Spaltbreite der ersten Blende  $F_1$  von 5 mm, wie sie bei den Messungen mit der  $0,3\ \mu$  Zaponlackfolie verwendet wurden, aus der Halbwertsbreite der ThC-A-Linie und der ThB-F-Linie zu 0,7% bestimmt. Zur Vergrößerung der registrierten Positronenintensität wurde für die Messungen im Energiebereich oberhalb 0,4 MeV ein etwas breiterer Zählrohrspalt (und auch eine entsprechend grössere Spaltbreite der ersten Blende) verwendet, der mit einer  $4\ \mu$  Cellophanfolie abgeschlossen war.

Die Bestimmung der Wahrscheinlichkeit der Positronenemission des Th(C+C'') erfordert neben der Ausmessung des Positronenspektrums auch diejenige des Elektronenspektrums. Das Spektrum

der  $\text{Th}(\text{B}+\text{C}+\text{C}'')$ -Elektronen wurde mehrere Halbwertszeiten später als das Spektrum der Positronen ausgemessen, als die Intensität der Quelle soweit abgeklungen war, dass die Elektronenzahl mit einem Scale of 32 registriert werden konnte. Die Energieverteilung des kontinuierlichen Elektronenspektrums ergibt sich in Übereinstimmung mit den Messungen von FLAMMERSFELD<sup>9)</sup> \*).

Die verschiedenen Präparate, mit denen wiederholt das Positronenspektrum ausgemessen wurde, wurden in einer Standardanordnung durch Messung ihrer  $\gamma$ -Intensität miteinander verglichen. Diese Messungen erlaubten auch eine absolute Intensitäts-

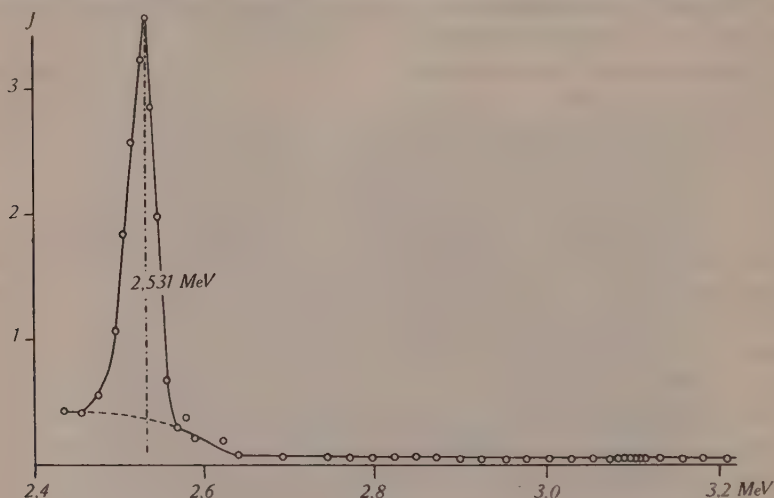


Fig. 2.

*X-Linie des  $\text{ThC}''$ .*

Intensität der X-Linie:  $2,2 \cdot 10^{-3}$  Elektronen/Zerfall  $\text{ThC}''$ . (Der Untergrund sind Compton-Elektronen.) Eine Konversionslinie der sehr schwachen 3,2 MeV- $\text{ThC}''$ - $\gamma$ -Strahlung ist nicht angedeutet.

bestimmung der Quellen, da die Ansprechwahrscheinlichkeit des verwendeten Zählrohrs für die  $\gamma$ -Linien der  $\text{Th}(\text{B}+\text{C}+\text{C}'')$ - $\gamma$ -Strahlung durch  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzmessungen bestimmt worden war (BRADT, GUGELOT, HUBER, MEDICUS, PREISWERK und SCHERRER<sup>10)</sup>).

Unmittelbar nach der Ausmessung des Positronenspektrums wurde stets zur Kontrolle der Intensitätsbestimmung die Konversionslinie der 2,62 MeV- $\gamma$ -Strahlung des  $\text{ThC}''$  (X-Linie) aus-

\*) Bei Messungen unter Verwendung der breiten Spalte und der  $4 \mu$  Cellophan-Zählrohr-Abschlussfolie fällt die Stosszahl bei Energien unterhalb von 40 keV rasch auf Null ab; mit der  $0,3 \mu$  Abschlussfolie findet ein Abschneiden erst unterhalb von 15 keV statt.

gemessen (Fig. 2). Die mit einem Achtfach-Untersetzer registrierte Koinzidenzzahl am Ort des Intensitätsmaximums der X-Linie war von der Grössenordnung 5000 Koinzidenzen pro Minute. In Übereinstimmung mit den Messungen von ARNOULT<sup>11)</sup> und FLAMMERSFELD<sup>9)</sup> wurde die Konversionswahrscheinlichkeit der 2,62 MeV- $\gamma$ -Strahlung des ThC'' zu 0,22% bestimmt. Fig. 2 zeigt überdies noch Messpunkte im Energiebereich 2,6–3,2 MeV. Von einer Konversionslinie der sehr schwachen 3,2 MeV-ThC''- $\gamma$ -Strahlung\*), die

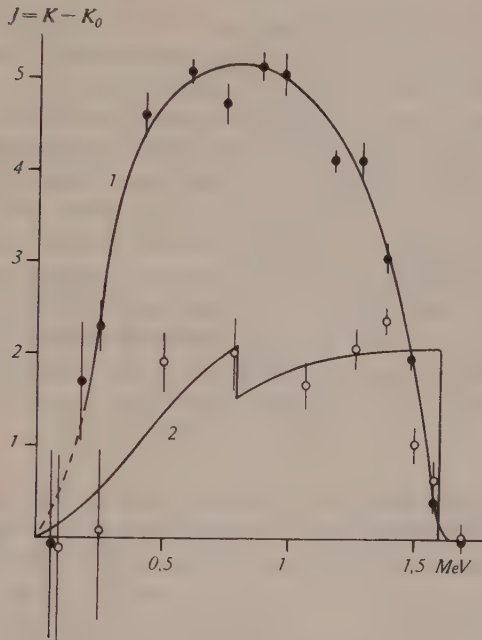


Fig. 3.

*Th(C+C'')-Positronenspektrum.*

Kurve 1: (volle Kreise) Messpunkte mit Th(B+C+C'')-Präparat auf 0,1 mm Pt.  
Kurve 2: Theoretisches Spektrum der durch Paarkonversion erzeugten Positronen  
nach JAEGER und HULME (Ordinaten um 15% überhöht).

Leere Kreise: Messpunkte mit Präparat auf 5  $\mu$  Al.

beim direkten Übergang des am intensivsten angeregten ThD-Niveaus in den Grundzustand emittiert wird, konnte keine Andeutung beobachtet werden.

Das Resultat der Messungen des Th(B+C+C'')-Positronenspektrums ist in Fig. 3 eingetragen. Kurve 1 zeigt das Positronenspektrum des auf einem Platinblech von 0,1 mm Dicke gesammelten

\*)  $I_\gamma = 0,03$  Quanten/Zerfall ThC'' nach ITOH und WATASE.<sup>12)</sup>



aktiven Thoriumniederschlag (volle Kreise). Die Anzahl der registrierten Koinzidenzen im Maximum betrug nach Abzug des durch Einschwenken einer Blende bestimmten Nulleffekts ca. 40 Koinzidenzen pro Minute. Die Gesamtintensität dieses Spektrums, zu dem die vom  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$  selbst emittierten Positronen 40% und die im Platin erzeugten Positronen 60% beitragen, beträgt

$$N_{\text{Pt-Träger}}^+ = 5,7 \cdot 10^{-4} e^+/\text{Zerfall ThB}.$$

Kurve 2 zeigt das nach JAEGER und HULME<sup>7)</sup> theoretisch berechnete Spektrum der durch die Paarkonversion der harten  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$ - $\gamma$ -Strahlung von den  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$ -Atomen selbst emittierten Positronen. 90% der Intensität dieses Spektrums rühren von der Paarkonversion der 2,62 MeV-Quadrupollinie her, welche beim Übergang  $\text{ThC}''-\text{ThD}$  emittiert wird. Die beim Übergang  $\text{ThC}-\text{ThC}'$  emittierte 1,802 MeV Dipollinie (ELLIS<sup>13)</sup>, ITOH und WATASE<sup>12)</sup>), deren Intensität nach CURRAN, DEE und STROTHERS<sup>14)</sup> ca. 15% der Intensität der 2,62 MeV-Linie beträgt, trägt nach JAEGER und HULME ca. 10% zur gesamten Positronenintensität bei. Die theoretische Gesamtintensität des aus der Paarkonversion dieser beiden  $\gamma$ -Linien resultierenden Positronenspektrums ergibt sich zu

$$N_{\text{Paarkonv}}^+ = 2,0 \cdot 10^{-4} e^+/\text{Zerfall ThB}.$$

theor

Die Messpunkte des mit 5  $\mu$  Aluminium als Trägerfolie gemessenen  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$ -Positronenspektrums, welche in Fig. 3 als leere Kreise eingezeichnet sind, gruppieren sich um die berechnete Kurve, wenn die Ordinaten der theoretischen Kurve um ca. 15% vergrößert werden, was bei der gezeichneten Kurve 2 getan wurde. Als experimenteller Wert für die Paarkonversion der  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$ - $\gamma$ -Strahlung ergibt sich somit

$$N_{\text{Paarkonv}}^+ = 2,3 \cdot 10^{-4} e^+/\text{Zerfall ThB}.$$

experim

Das gemessene Positronenspektrum des  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$  ist also sowohl der Gesamtintensität als auch der Energieverteilung nach in sehr guter Übereinstimmung mit dem berechneten Spektrum der aus der Paarkonversion der beiden intensivsten harten  $\gamma$ -Linien herrührenden Positronen. (Die Ungenauigkeit des experimentellen wie auch des theoretischen Wertes ist von der Grössenordnung 10%.)

Die Intensität des Spektrums der vom  $\text{Th}(\text{C}+\text{C}'')$  selbst emittierten wie auch diejenige des Spektrums der im Platin erzeugten

Positronen fällt unterhalb von ca. 0,3 MeV rasch gegen Null ab. Im besondern wurde durch wiederholte Messungen verifiziert, dass auch bei sehr kleinen Energien im Bereich von 15–80 keV kein Wiederanstieg der Intensität des Positronenspektrums stattfindet.

Das Ergebnis unserer Messung ist in befriedigender Übereinstimmung mit den Resultaten von ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODA EW<sup>4</sup>). (In dieser Arbeit wird die statistische Schwankung der Messwerte nicht angegeben.) Bei der Interpretation des gemessenen Positronenspektrums berücksichtigen die genannten Autoren die 1,802 MeV-Linie des ThC nicht. Die Differenz zwischen dem beobachteten Spektrum und dem allein der Paarkonversion der 2,62 MeV-Linie zuzuordnenden Spektrum schreiben sie einer Paarkonversion der kinetischen Energie der Zerfallselektronen zu. Obwohl die Intensität der 1,8 MeV-Linie klein ist gegenüber derjenigen der 2,62 MeV-Linie, kann, wie Fig. 3 zeigt, ihr Beitrag im weichen Teil des Positronenspektrums nicht vernachlässigt werden. Bei Berücksichtigung der statistischen Schwankung der Messwerte geben unserer Ansicht nach auch die Werte von ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODA EW keinen systematischen Hinweis auf eine über die Paarkonversion der beiden  $\gamma$ -Linien hinausgehende zusätzliche Positronenemission, im Einklang mit der theoretischen Voraussage, dass die Wahrscheinlichkeit der Paarkonversion der kinetischen Energie schneller Elektronen klein ist verglichen mit derjenigen der Paarkonversion von  $\gamma$ -Strahlen gleicher Energie. Dies zeigte auch schon der Nachweis des Fehlens einer merklichen Positronenemission beim  $\beta$ -Strahler UX<sub>2</sub> (BRADT<sup>2</sup>), HEINE<sup>3</sup>) ( $N_{UX_2}^+ = 3 \cdot 10^{-4} e^+/\text{Zerfall}$ ).

Nach Fig. 3 ist die Anzahl der durch Paarzerzeugung in der 0,1 mm Platinträgerfolie entstandenen Positronen 1,5mal grösser als die Anzahl der vom Th(C+C'') selbst emittierten Positronen. Die Dicke der Platinträgerfolie ist kleiner als die Reichweite der energiereichsten Positronen, sodass für eine dicke Folie ( $d \geq R_{\max}$ ) der entsprechende Wert noch grösser sein muss. Nach ALICHANOW und Mitarbeitern ist die Anzahl der Positronen, emittiert von einer mit einer dicken Bleifolie umgebenen Th(B+B+C'')-Quelle (äussere Paarzerzeugung in Blei) viermal grösser als die Anzahl der von der unbedeckten Quelle emittierten Positronen (Paarkonversion):

$$\left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{Th(C+C'')}} = 4,0.$$

Für RaC ist nach diesen Autoren das entsprechende Verhältnis wesentlich kleiner, nämlich

$$\left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{RaC}} = 0,9.$$

Dieser Unterschied wurde von ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODAEW als weiterer Hinweis dafür betrachtet, dass nur ein Teil der vom Th(C+C'') und vom RaC emittierten Positronen in der Paarkonversion der härtesten  $\gamma$ -Linien seinen Ursprung hat.

Wir haben das Verhältnis

$$\left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{Th(C+C'')}} : \left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{RaC}}$$

nach JAEGER und HULME<sup>7)</sup> und nach BETHE und HEITLER<sup>15)</sup> berechnet unter der Voraussetzung, dass *alle* direkt emittierten Positronen durch Paarkonversion der  $\gamma$ -Linien entstanden sind. Das Verhältnis  $N_{\text{Pb}}^+/N_{\text{Konv}}^+$  muss für Th(C+C'') grösser sein als für RaC aus den zwei folgenden Gründen:

1) Die 2,62 MeV-Linie des ThC'' ist eine Quadrupollinie, während nach ITOH und WATASE<sup>12)</sup> die intensiven harten RaC-Linien Dipollinien sind. Für Quadrupolstrahlung ist nach JAEGER und HULME<sup>7)</sup> die Wahrscheinlichkeit der Paarkonversion nur etwa halb so gross wie für Dipolstrahlung.

2) Da die Maximalenergie ( $h\nu - 2mc^2$ ) des RaC-Positronenspektrums bedeutend kleiner ist als die Maximalenergie des ThC''-Positronenspektrums, ist bei gleicher Zahl im Blei erzeugter Positronen die Zahl der aus der Bleifolie austretenden Positronen für Th(C+C'') grösser als für RaC. Die Zahl der aus der Bleifolie austretenden Positronen berechnet sich zu:

$$N_{\text{Pb}}^+ = n_0 \int_0^{E_{\text{max}}} \sigma(h\nu, E) dE \int_0^{R(E)} D(E, x) dx,$$

wobei  $\sigma(E)$  den differentiellen Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung eines Positrons der Energie  $E$  durch ein Quant der Energie  $h\nu$  (ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODAEW),  $D(E, x)$  die Durchlässigkeit einer Schichtdicke  $x$  für Positronen der Energie  $E$  (BLEULER und ZÜNTI<sup>16)</sup>) bedeutet. Die relativen Intensitäten der härtesten RaC-Linien wurden der Arbeit von ITOH und WATASE entnommen. Die Berechnung ergibt:

$$\left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{Th(C+C'')}} : \left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{RaC}} = 4,7,$$

in völliger Übereinstimmung mit dem experimentellen Wert von ALICHANOW, ALICHANIAN und KOSODAEV

$$\left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{Th(C+C'')}} : \left( \frac{N_{\text{Pb}}^+}{N_{\text{Konv}}^+} \right)_{\text{RaC}} = 4,5.$$

Dieser Wert bestätigt also durchaus die Erwartung der Theorie der Paarkonversion und enthält keinen Hinweis auf eine über die durch Paarkonversion der  $\gamma$ -Linien verursachte Positronenemission hinausgehende Emission von positiven Teilchen durch  $\text{Th(B+C+C'')}$  oder  $\text{RaC}$ .

## II. Untersuchung der simultanen Emission von Teilchen beim $\beta$ -Zerfall des $\text{ThC}''$ mit Hilfe von Zählrohr-Koinzidenzmessungen.

Eine andere Methode, die ebenfalls zum Nachweis der Emission von Paaren dienen kann, ist die Registrierung der simultanen Emission von Teilchen durch Zählrohr-Koinzidenzmessungen. Werden bei Verwendung einer Koinzidenzanordnung nur solche Zerfallsprozesse registriert, bei denen das Zerfallselektron in ein Zählrohr und ein gleichzeitig emittiertes Teilchen in ein anderes Zählrohr gelangt, so können die verhältnismässig seltenen Zerfallsprozesse, bei denen jeweils mehr als ein Teilchen emittiert wird, ausgesiebt werden.

Der  $\beta$ -Zerfall des  $\text{ThC}''$  führt bekanntlich stets in ein angeregtes Niveau des  $\text{ThD}$ -Kerns, von dem aus der Übergang in den Grundzustand normalerweise durch Emission von zwei  $\gamma$ -Quanten (OPPENHEIMER<sup>17</sup>) erfolgt. Diejenigen Zerfallsprozesse, bei denen eines der  $\gamma$ -Quanten in der Elektronenhülle konvertiert ist, können so z. B. durch Zählrohr-Koinzidenzmessungen ausgesiebt werden, da sie zu Elektronenkoinzidenzen, und nicht nur, wie alle andern Zerfallsprozesse auch, zu  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen Anlass geben.

Koinzidenzmessungen mit  $\text{ThC}''$  sind, unter Verwendung von zwei Elektronen-Zählrohren, von BENEDETTI<sup>5</sup>) ausgeführt worden. Die Häufigkeit der Elektronenkoinzidenzen ist verhältnismässig gross, und BENEDETTI ist geneigt, anzunehmen, dass der überwiegende Teil dieser Koinzidenzen durch die Paarkonversion der 2,62 MeV- $\gamma$ -Strahlung verursacht ist. Nach dieser Annahme müsste die Wahrscheinlichkeit der Paarkonversion der 2,62 MeV-Linie aber rund 50mal grösser sein als der durch Ausmessung des  $\text{Th(C+C'')}$ -Positronenspektrums experimentell bestimmte Wert (Teil I).



Ausgehend von BENEDETTIS Koinzidenzmessungen wurde von uns eine ähnliche Untersuchung durchgeführt, deren experimentelles Resultat mit demjenigen von BENEDETTI in guter Übereinstimmung ist. Die Diskussion, welche im nächsten Paragraphen im Anschluss an die Darstellung unserer Versuche durchgeführt wird, zeigt hingegen, dass sowohl die relative Häufigkeit der  $\text{ThC}''$ -Elektronenkoinzidenzen, wie auch deren Abnahme bei Einschalten von Absorbern durch die *Konversion der  $\text{ThC}''$ - $\gamma$ -Linien in der Elektronenhülle* vollständig erklärt werden kann.

Bei der Emission eines Paares verlassen nicht nur zwei, sondern drei Teilchen — die beiden Partner des Paares und das Zerfallselektron — gleichzeitig das sich umwandelnde Atom. Sind die zu einer Paaremission führenden Zerfallsprozesse wesentlich seltener als die mit der Aussendung eines Konversionselektrons verbundenen Zerfallsprozesse, so werden sie bei Zweifachkoinzidenzmessungen von letzteren verdeckt. Eine bessere Aussiebung von Paaremissionsprozessen kann versucht werden durch Messungen von Koinzidenzen dreier Elektronenzählrohre (Fig. 5). Solche Dreifachkoinzidenzmessungen wurden deshalb von uns auch ausgeführt; ihre Ergebnisse werden in § 2 diskutiert.

### § 1. Messung von Zweifachkoinzidenzen mit $\text{ThC}''$ und $\text{Th}(B+C+C'')$ .

Zweifachkoinzidenzen wurden mit der in Fig. 4 eingezeichneten Anordnung registriert. Die dabei verwendeten Aluminiumzählrohre (Durchmesser 2,4 cm, freie Drahtlänge 5,5 cm, Gasfüllung: 100 mm Hg Argon plus 10 mm Hg Alkohol) sind bis auf eine Wandstärke von 0,1 mm abgedreht. Die  $\text{ThB}$ -Zerfalls- und Konversionselektronen werden in der Zählrohrwand praktisch vollständig absorbiert, während die energiereicheren  $\text{ThC}$ - und  $\text{ThC}''$ -Elektronen grösstenteils ins Zählrohr gelangen.  $\text{ThC}''$ -Quellen wurden nach der Rückstossmethode isoliert und ihre Reinheit (ca. 99,9%) durch Messung der Abklingkurve kontrolliert; Trägerfolie für das  $\text{ThC}''$ , wie auch für den aktiven  $\text{Th}(B+C+C'')$ -Niederschlag, war ein zu einem schmalen Zylinder zusammengebogener Aluminiumstreifen von 5  $\mu$  Dicke.

Die *Koinzidenzrate*, d. h. das Verhältnis der Zahl der pro sec registrierten Koinzidenzen  $K''$  zur Zahl der pro sec registrierten Einzelstösse  $Z$ , ist für reines  $\text{ThC}''$  ungewöhnlich gross; bei einem von Quelle und Zählrohr aufgespannten Raumwinkel  $\alpha = \frac{\Omega}{4\pi} = 0,081$

und einer Zählrohrwandstärke  $d = 0,102 \text{ mm}^*$ ) ergibt sie sich zu

$$R_{\text{ThC}''} = \left( \frac{K''}{Z} \right)_{\text{ThC}''} = (1,05 \pm 0,05) \cdot 10^{-2}.$$

Koinzidenzen und Einzelstösse fallen beide mit der Halbwertszeit des ThC'' von 3,2 min ab (Fig. 5).

1) Die grosse Häufigkeit des Auftretens von Elektronenkoinzidenzen ist für den  $\beta$ -Strahler ThC'' charakteristisch. Mit einer Th(B+C+C'')-Quelle ergibt die Messung der Koinzidenzrate in der gleichen Anordnung den dreimal kleinern Wert

$$R_{\text{Th(B+C+C'')}} = (0,37 \pm 0,02) \cdot 10^{-2}.$$

Das Verhältnis der Koinzidenzraten  $R_{\text{Th(B+C+C'')}}/R_{\text{ThC}''} = 0,35 \pm 0,03$  ist innerhalb der Messgenauigkeit gleich dem Verzweigungsverhältnis ThC'':Th(C+C'') (35%), d. h. gleich dem Verhältnis der Zahl der ThC''-Elektronen zur Zahl der Th(C+C'')-Elektronen im radioaktiven Gleichgewicht.

Da die ThB-Elektronen nicht mehr in die Zählrohre gelangen, ist somit für eine im radioaktiven Gleichgewicht befindliche Th(B+C+C'')-Quelle das Verhältnis der Zahl der vom ThC'' zur Zahl der vom Th(C+C'') verursachten Koinzidenzen

$$\frac{K''_{\text{ThC}''}}{K''_{\text{Th(C+C'')}}} = 1,0 \pm 0,1.$$

Die bei der verwendeten Anordnung mit einer Th(B+C+C'')-Quelle registrierten Koinzidenzen werden also praktisch *nur* von dem im Gleichgewicht vorhandenen ThC'' verursacht. Folglich sind die ThC''-Koinzidenzen nicht etwa *Sekundäreffekten* (Auslösung von Sekundärelektronen in der Unterlage usw.) zuzuschreiben, denn sonst müsste, da das ThC-Elektronenspektrum sogar noch etwas energiereicher ist als das Spektrum der ThC''-Zerfallselektronen ( $E_{\text{max}}^{\text{ThC}''} = 1,8 \text{ MeV}$ ,  $E_{\text{max}}^{\text{ThC}} = 2,25 \text{ MeV}$ ), die Th(B+C+C'')-Koinzidenzrate mindestens ebenso gross sein wie die ThC''-Koinzidenzrate, was keineswegs der Fall ist.

2) Der Anteil der ( $\beta, \gamma$ )-Koinzidenzen an der Zahl der beobachteten ThC''-Koinzidenzen kann leicht bestimmt werden. Zu diesem Zweck wird in der Anordnung der Fig. 4 über das eine der beiden Zählrohre ein Al-Zylinder von 2 mm Wandstärke geschoben, der die  $\beta$ -Strahlen praktisch vollständig, die  $\gamma$ -Strahlung jedoch nur unbedeutend absorbiert. Pro Messreihe wurden mit reinem ThC''

\* Bestimmt durch Vergleich der Absorption von  $\beta$ -Strahlen durch ein Zählrohr mit der Absorption durch zylindrisch zusammengebogene Al-Folien.

während drei Minuten auf diese Weise allein die  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen registriert; danach mit unbedeckten Zählrohren Elektronen- plus  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen. Berücksichtigt man, dass die Zahl der  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen, registriert mit unbedeckten Zählrohren, genau doppelt so gross ist wie die bei Umhüllung eines Zählrohrs mit dem

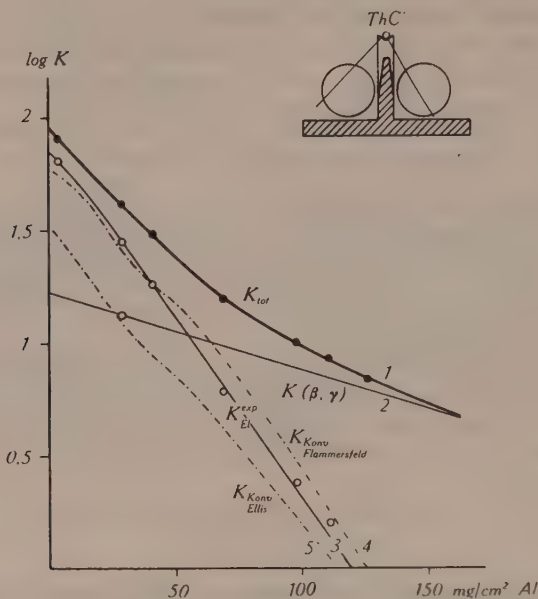


Fig. 4.

Absorptionsmessung der  $\text{ThC}''$ -Zweifachkoinzidenzen.

(Als Abszisse ist die Dicke des Al-Absorbers aufgetragen, der jedes der beiden Zählrohre umhüllt.)

Kurve 1: Messpunkte (volle Kreise).

Kurve 2:  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen.

Kurve 3: Differenz der Kurven 1 und 2: Registrierte Koinzidenzen minus  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen.

Kurve 4: Durch Konversionselektronen verursachte  $(\beta, e_{\text{Konv}})$ -Koinzidenzen, berechnet mit den Intensitätswerten der Konversionslinien von FLAMMERSFELD.

Kurve 5: Durch Konversionselektronen verursachte  $(\beta, e_{\text{Konv}})$ -Koinzidenzen, berechnet mit den Intensitätswerten der Konversionslinien von ELLIS.

Al-Zylinder gemessene Zahl der  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen, so ergibt sich als Resultat einer grösseren Anzahl von Messreihen der Anteil der  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen an der Gesamtzahl zu

$$\frac{R_{(\beta, \gamma)}}{R_{\text{total}}} = 0,33 \pm 0,05 \text{ für } \text{ThC}'', \text{ d. h. } R_{(\beta, \gamma)}^{\text{ThC}''} = 0,34 \cdot 10^{-2}.$$

Dieses experimentelle Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit dem berechneten Wert der ThC''( $\beta, \gamma$ )-Koinzidenzrate

$$R_{(\beta, \gamma)}^{\text{ThC}''} = 2 \alpha (\varepsilon_{2,62 \text{ MeV}} + \varepsilon_{0,55 \text{ MeV}}) = 0,30 \cdot 10^{-2}.$$

Rund ein Drittel der mit den 0,102 mm Al-Zählrohren registrierten ThC''-Koinzidenzen sind also ( $\beta, \gamma$ )-Koinzidenzen.

3) Zur weitem Untersuchung der Ursache der ThC''-Koinzidenzen wurden Absorptionsmessungen ausgeführt; Koinzidenzen mit einem ThC''-Präparat werden nacheinander registriert, wenn zuerst beide, dann eines und schliesslich keines der beiden Zählrohre mit Al-Absorbern bedeckt sind. Das Ergebnis einer grossen Anzahl solcher Messungen ist in Fig. 4 dargestellt; die dick ausgezogene Kurve 1 (volle Kreise) stellt die Gesamtzahl der registrierten Koinzidenzen dar, die dünn ausgezogene Kurve 3 (leere Kreise) ergibt sich nach Abzug der ( $\beta, \gamma$ )-Koinzidenzen (Kurve 2), welche letztere bei beidseitiger Bedeckung der Zählrohre genau wie die ThC''- $\beta$ -Strahlen absorbiert werden. Die Werte für die Absorberdicke 12  $\mu$  Al wurden bestimmt unter Verwendung von zwei Zählrohren, deren siebartig durchlöchernde Wand mit einer 12  $\mu$  Al-Folie abgeschlossen ist\*).

Eine Messung mit einem Goldabsorber von 52 mg/cm<sup>2</sup> zeigte, dass dieser die Koinzidenzhäufigkeit gleich stark herabsetzt wie ein Al-Absorber von 80 mg/cm<sup>2</sup>; dies entspricht der Relation von FOURNIER für die Absorption von *Elektronen* in verschiedenen Materialien.

Die Extrapolation auf Absorberdicke (inklusive Zählrohrwand) Null ergibt nach Fig. 4 für die Rate der *Elektronenkoinzidenzen*

$$R(0)_{\text{El}}^{\text{ThC}''} = [R_{\text{total}} - R_{(\beta, \gamma)}]_{d=0} = 1,4 \cdot 10^{-2}.$$

4) Wie oben dargelegt wurde, gibt die *Konversion der  $\gamma$ -Linien in der Elektronenhülle* (Internal Conversion) Anlass zu Elektronenkoinzidenzen; die relative Häufigkeit und die Absorbierbarkeit dieser Koinzidenzen ist nun zu berechnen.

Das Th(B+C+C'')- $\beta$ -Spektrum weist eine Reihe intensiver Linien auf, die dem Übergang ThC''—ThD zugeordnet sind. Die Intensität dieser Linien, d. h. die Zahl der Konversionselektronen pro Zerfall, sind unter andern von ELLIS<sup>13)</sup> auf Grund photographi-

\*) Der wirksame Raumwinkel dieser 12  $\mu$  Al-Zählrohre für Elektronen beträgt nur 63% der sonst verwendeten 102  $\mu$  Al-Zählrohre; die mit ihnen gemessenen Elektronen-Koinzidenzraten werden durch Division durch 0,63 auf den Raumwinkel der 102  $\mu$  Zählrohre reduziert.



scher Messungen, von FLAMMERSFELD<sup>9)</sup> durch Zählrohrmessungen bestimmt worden. Ihre Resultate sind in der folgenden Tabelle zusammengestellt.

Tabelle 1.

*Konversion der ThC''- $\gamma$ -Linien in der Elektronenhülle nach Ellis und Flammersfeld.*

Bez.	$h\nu$ (keV)	Schale	Elektron.- Energie (keV)	Intensität		$R = K''/Z$ nach FLAM- MERSFELD
				Elektronen/Zerfall ELLIS	ThC'' FLAMMERSF.	
<i>G</i>	<i>G</i> : 275,3	<i>K</i>	188,7	0,0157	0,0263	$0,43 \cdot 10^{-2}$
<i>Jb</i>	<i>G</i> : 275,3	<i>L<sub>I</sub></i>	260,9			
<i>Jb<sub>1</sub></i>	<i>G</i> : 275,3	<i>L<sub>III</sub></i>	263,6	0,0040	0,0040	0,06 <sub>5</sub>
<i>L</i>	<i>L</i> : 507,3	<i>K</i>	422,0	0,0084	0,0217	0,35
<i>M</i>	<i>L + M</i>	<i>L<sub>I</sub> + K</i>	494,2	0,0084	0,0169	0,27
<i>N</i>	<i>M</i> : 580,3	<i>L<sub>I</sub></i>	566,7	0,0015	0,0034	0,05 <sub>5</sub>
<i>X</i>	<i>X</i> : 2620	<i>K</i>	2531	0,0018	0,0022	0,03 <sub>5</sub>
				0,040	0,075	$1,2 \cdot 10^{-2}$

Mit den Intensitätswerten von FLAMMERSFELD ist also die durch die Konversion der  $\gamma$ -Strahlung in der Elektronenhülle verursachte Koinzidenzhäufigkeit

$$R_{\text{Konv.}}^{\text{ThC''}} = 1,2 \cdot 10^{-2}$$

von der Grösse der experimentell bestimmten Häufigkeit der Elektronenkoinzidenzen  $R_{\text{el}} = 1,4 \cdot 10^{-2}$ .

Die Absorptionskurve der Konversionselektronen wurde für jede einzelne der angeführten Elektronenlinien nach BLEULER und ZÜNIG<sup>16)</sup> berechnet, wobei die geometrische Anordnung (zylindrische Absorber, welche die Zählrohre umhüllen) berücksichtigt wurde. Auf Grund dieser Absorptionskurven und der Absorptionskurve der  $\beta$ -Strahlen wird die Absorption der durch die Konversion der  $\gamma$ -Linien in der Elektronenhülle verursachten Elektronenkoinzidenzen berechnet. Das Ergebnis ist in Fig. 4 eingetragen. Die berechnete Kurve stimmt bei Verwendung der FLAMMERSFELD'schen Intensitätswerte mit der experimentell bestimmten praktisch überein.

Die relativ grosse Häufigkeit der ThC''-Elektronenkoinzidenzen ist also durch die grosse Zahl der vom ThC'' ausgesandten Konversionselektronen zu erklären. Die Zweifachkoinzidenzmessungen geben keinen Hinweis auf eine darüber hinausgehende simultane Emission von geladenen Teilchen durch ThC''.

§ 2. Messung von Dreifachkoinzidenzen mit  $\text{ThC}''$ .

Da nach dem vorangehenden Paragraphen die Wahrscheinlichkeit der Paaremission von Teilchen beim  $\beta$ -Zerfall des  $\text{ThC}''$ -Kerns jedenfalls nicht gross genug ist, um zur Elektronen-Zweifachkoinzidenzrate einen merklichen Beitrag zu liefern, wurde versucht,

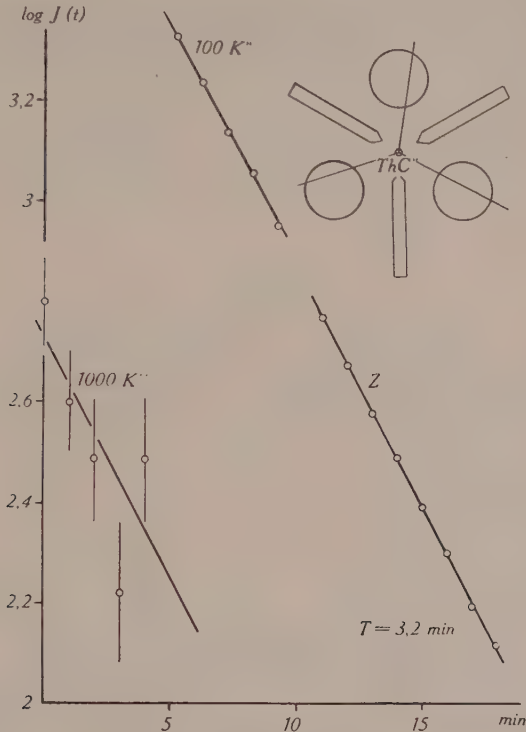


Fig. 5.

Zeitlicher Abfall der  $\text{ThC}''$ -Koinzidenzen.

(Zählrohr-Wandstärke  $102 \mu \text{ Al}$ ,  $\alpha = \frac{\Omega}{4\pi} = 0,081$ )

$Z$ : Einzelstösse

$K''$ : Zweifachkoinzidenzen

$K'''$ : Dreifachkoinzidenzen

$Z:K'':K''' = 10000:105:0,83$ .

die Methode der Koinzidenzmessung als Mittel zur Aussiebung von Paaremissionsprozessen empfindlicher zu gestalten. Es wurden nunmehr Dreifachkoinzidenzen dreier bezüglich der  $\text{ThC}''$ -Quelle symmetrisch angeordneter Zählrohre (Fig. 5) registriert. Damit sind zur Konkurrenz nur noch solche Prozesse zugelassen, bei denen

neben dem Zerfallselektron *zwei weitere Teilchen* (resp. Quanten) gleichzeitig das sich umwandelnde Atom verlassen.

Wie bei den Zweifachkoinzidenz-Messungen beträgt der von der Quelle und einem Zählrohr aufgespannte Raumwinkel für die 102  $\mu$ -Al-Zählrohre  $\alpha = 0,081$ , für die 12  $\mu$ -Al-Zählrohre  $\alpha = 0,051$ . Zum Koinzidenzverstärker (Auflösungsvermögen  $\tau = 1,5 \cdot 10^{-7}$  sec) wird ein dritter Zweig hinzugeschaltet. Mit jedem ThC''-Präparat werden zuerst während 5 Minuten Dreifachkoinzidenzen registriert, darauf während 5 Minuten Zweifachkoinzidenzen und schliesslich während 9 Minuten Einzelstösse. Fig. 5 zeigt den zeitlichen Abfall sowie das Verhältnis der Intensitäten der Koinzidenzen und der Einzelstösse bei Verwendung der 102  $\mu$ -Al-Zählrohre. Die folgende Tabelle 2 enthält die Resultate der mit den 102  $\mu$ -Al- und den 12  $\mu$ -Al-Zählrohren ausgeführten Messungen.

Tabelle 2.

Messung von ThC''-Dreifachkoinzidenzen.

Gesamtzahl der registrierten Koinzidenzen und Einzelstösse	102 $\mu$ Al-Z.R. $\alpha = 0,081$	12 $\mu$ Al-Z.R. $\alpha = 0,051$
<i>Dreifachkoinzidenzen</i> reg. von $t = 0$ bis $t = 5'$	$34 \pm 6$	$27 \pm 5$
<i>Zweifachkoinzidenzen</i> reg. von $t = 5'15''$ bis $t = 10'15''$	$1373 \pm 37$	$654 \pm 26$
<i>Einzelstösse</i> reg. von $t = 11'$ bis $t = 20'$	48,700	16,500
Daraus berechnet durch Extrapolation auf $t = 0$ :		
<i>Dreifachkoinzidenzrate</i> $\frac{K'''}{Z}$	$0,83 \cdot 10^{-4}$	$1,93 \cdot 10^{-4}$
<i>Zweifachkoinzidenzrate</i> $\frac{K''}{Z}$	$1,05 \cdot 10^{-2}$	$1,48 \cdot 10^{-2}$

Die mittleren Impulshäufigkeiten, extrapoliert auf  $t = 0$ , betragen z. B. bei den Messungen der zweiten Kolonne:  $K''' = 4,4$  Dreifachkoinzidenzen/min und  $Z = 23000$  Einzelstösse/min. Der vollständig unbedeutende Anteil der zufälligen Koinzidenzen und des Höhenstrahlungs-Nulleffekts ist selbstverständlich jeweils subtrahiert.

Wie das in Tabelle 2 dargestellte Ergebnis der Messungen zeigt, treten simultane Entladungen der drei Zählrohre also mit beträchtlicher Häufigkeit auf. Fig. 5 zeigt, dass diese Dreifachkoinzidenzen

innerhalb der Messgenauigkeit mit der 3,2 min-Periode des ThC'' abfallen.

Wird die ThC''-Quelle durch eine in ein 50  $\mu$ -Glasröhrchen eingeschlossene UX<sub>2</sub>-Quelle (max. Energie 2,3 MeV) ersetzt, die in den Zählrohren die gleiche Einzelstosszahl (15000—30000/min) bewirkt, so werden mit den 102  $\mu$ -Zählrohren, abgesehen vom Höhenstrahlungs-Nulleffekt von einer Dreifachkoinzidenz pro Stunde, keinerlei weitere Dreifachkoinzidenzen registriert. Solche Kontrollmessungen wurden sowohl vor als auch nach jeder mit

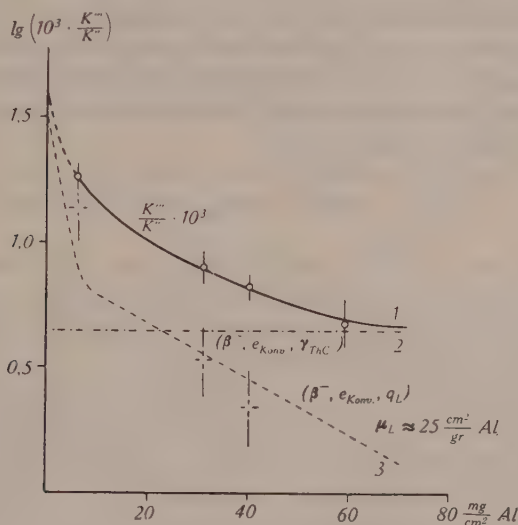


Fig. 6.

Absorptionsmessung der ThC''-Dreifachkoinzidenzen.

Kurve 1: Messpunkte

Kurve 2:  $(\beta^-, e_{\text{Konv}}, \gamma)$ -Dreifachkoinzidenzen ( $\beta^-$ : Zerfallselektron,  $e_{\text{Konv}}$ : Konversionselektron,  $\gamma$ : 2,62 MeV- $\gamma$ -Quant)

Kurve 3:  $(\beta^-, e_{\text{Konv}}, q_L)$ - und  $(\beta^-, e_{\text{Konv}}, e_{\text{Auger}})$ -Dreifachkoinzidenzen ( $q_L$ : Röntgenquant,  $e_{\text{Auger}}$ : Augerelektron).

ThC'' ausgeführten Messung vorgenommen. Sie zeigen, dass die vom ThC'' verursachten Dreifachkoinzidenzen keine zufälligen Koinzidenzen sind und dass sie auch nicht durch reflektierte und gestreute Elektronen oder durch von Elektronen bewirkte Sekundäreffekte verursacht werden.

Zur Ermittlung der Ursache der Dreifachkoinzidenzen wurden Absorptionsmessungen ausgeführt, deren Ergebnis in Fig. 6 dargestellt ist. Die als Abszisse aufgetragene Absorberdicke  $d$  (Kurve 1) ist die Dicke des Al-Zylinders (inklusive Zählrohrwand), mit



der jedes der drei Zählrohre bedeckt ist. Als Ordinate ist das Verhältnis der Zahl der Dreifachkoinzidenzen zur Zahl der Zweifachkoinzidenzen,  $K'''/K''$ , aufgetragen.

Im vorangehenden Paragraphen wurde gezeigt, dass die Konversion der  $\text{ThC}''$ - $\gamma$ -Linien in der Elektronenhülle die Elektronen-Zweifachkoinzidenzen erklärt. Es ist nun zu untersuchen, inwiefern die Internal Conversion auch als Ursache der Dreifachkoinzidenzen angesehen werden kann.

1) Eine Dreifachkoinzidenz wird ausgelöst, wenn das  $\text{ThC}''$ -Zerfallselektron in einem, ein Konversionselektron der Linien  $G$ ,  $L$ ,  $M$  oder  $N$  in einem andern und das gleichzeitig emittierte 2,62 MeV-Quant im dritten Zählrohr registriert wird. Das Verhältnis der Zahl der so ausgelösten Dreifachkoinzidenzen zur Zahl der Zweifachkoinzidenzen beträgt

$$\left(\frac{K'''}{K''}\right)_{\text{ThC}''} = 3 \alpha \varepsilon_{2,62 \text{ MeV}} = 0,4_5 \cdot 10^{-2}.$$

Dieser Wert ist praktisch unabhängig von der Absorberdicke. In Fig. 6 ist dieser Beitrag (Kurve 2) vom gemessenen Verhältnis  $(K'''/K'')_{\text{tot}}$  (Kurve 1) abgezogen worden: die Differenz ist durch die eingetragenen Kreuze dargestellt.

2) Wird durch den Prozess der Internal Conversion ein Elektron aus der Hülle herausgeworfen, so wird die Lücke unter Emission von Röntgenstrahlen wieder aufgefüllt. Dreifachkoinzidenzen werden also auch dann ausgelöst, wenn das  $\text{ThC}''$ -Zerfallselektron in einem, das Konversionselektron in einem zweiten und ein Röntgenquant im dritten Zählrohr registriert wird.

a) Die  $K$ -Strahlung liefert direkt nur einen vernachlässigbar kleinen Beitrag zur Dreifachkoinzidenzrate, da die Sensibilität der Aluminium-Zählrohre für die  $K$ -Strahlung des Pb ( $\text{ThD}$ ) nur einige Promille beträgt. Für Absorberdicken von nur wenigen  $\text{mg/cm}^2$  Al ist aber der Beitrag der infolge Konversion der  $K$ -Strahlung im eigenen Atom emittierten *Augerelektronen* zur Dreifachkoinzidenzrate (statt des  $K$ -Quants wird ein Augerelektron im dritten Zählrohr registriert) nicht zu vernachlässigen. Mit einer Fluoreszenzausbeute, d. h. einem Intensitätsverhältnis von Augerelektronen und  $K$ -Quanten von ca. 0,1, ist für Absorberdicke Null  $(K'''/K'')_{\text{Auger}} \approx 2,5 \cdot 10^{-2}$ . Die Abnahme von  $(K'''/K'')_{\text{Auger}}$  mit zunehmender Absorberdicke ist durch die Absorption der  $K$ -Augerelektronen bestimmt; der Verlauf der Absorptionskurve dieser Elektronen, deren Energie ca. 70 keV beträgt, ist praktisch gleich dem Verlauf der Absorptionskurve der  $K$ - und  $L$ -Konversions-

elektronen der 93,5 keV-Strahlung des  $\text{Ag}^{*107, 109}$ , welche experimentell bestimmt wurde. Damit erhalten wir den Beitrag des Augereffekts zur relativen Anzahl der Dreifachkoinzidenzen  $K'''/K''$ , der in Fig. 6 eingezeichnet ist (steiler Anstieg der Kurve 3 bei kleinen Absorberdicken).

b) Gleichzeitig mit fast allen Konversionselektronen wird aber auch ein Quant der *L-Röntgenstrahlung* emittiert. Die Sensibilität der Zählrohre für die *L*-Strahlung des Pb ( $\lambda \approx 1,2 \text{ \AA}$ ) ist nun, im Gegensatz zur Sensibilität für die *K*-Strahlung, verhältnismässig gross, da für diese weiche Strahlung die Wahrscheinlichkeit der Auslösung eines Elektrons aus der Aluminiumkathode zwar ebenfalls nur wenige Promille beträgt, die Absorption im Argon aber beträchtlich ist. Die Sensibilität des Zählrohrs für die *L*-Strahlung ist von der Grössenordnung  $\varepsilon^{\text{Argon}} = \mu_L \cdot d_{\text{eff}} = 3\%$ . Die relative Anzahl der Dreifachkoinzidenzen, an deren Zustandekommen die *L*-Strahlung beteiligt ist, ergibt sich damit zu

$$(K'''/K'')_{\text{L-Str}} = 3 \propto \varepsilon_L = 0,9 \cdot 10^{-2}.$$

Die Abnahme des Verhältnisses  $K'''/K''$  mit wachsender Absorberdicke ist im wesentlichen durch die Absorption der *L*-Strahlung in den Al-Absorbern bestimmt, d. h. durch den Faktor  $e^{-\mu_L \cdot v_{\text{Al}}}$ . Wir haben in Fig. 6 den berechneten Beitrag der *L*-Strahlung zur relativen Anzahl der Dreifachkoinzidenzen  $(K'''/K'')_{\text{L-Str}}$  als Kurve 3 gestrichelt eingezeichnet (bei den kleinsten Energien punktiert). Fig. 6 zeigt, dass zwar keiner der diskutierten Effekte *allein*, wohl aber diese Effekte in ihrer *Gesamtheit* die beobachteten Dreifachkoinzidenzen erklären, und zwar sowohl ihre absolute Häufigkeit als auch deren Variation bei Einschalten von Absorbern zwischen Quelle und Zählrohre.

Ebensowenig wie die Zweifachkoinzidenzmessungen enthalten also die Dreifachkoinzidenzmessungen einen Hinweis auf eine „anomal“ häufige Emission von Paaren durch den ThC''-Kern\*).

---

\*) In einer ersten kurzen Mitteilung des Resultates der Experimente der vorliegenden Arbeit (BRADT, HALTER, HEINE und SCHERRER<sup>18)</sup>) wurde auf eine Paaremission des ThC'' mit einer Häufigkeit von  $1,8 \cdot 10^{-2}$  Paaren/Zerfall ThC'' geschlossen. Diese irrtümliche Deutung wurde durch eine ungenügende Berücksichtigung der verhältnismässig grossen Ansprechwahrscheinlichkeit der verwendeten argongefüllten Zählrohre für die Pb-L-Strahlung verursacht. Ausserdem wurde übersehen, dass die an den Zählrohrwänden reflektierten Elektronen (s. Teil III) für das Zustandekommen der leicht diffusen Spuren auf den durch Koinzidenzen gesteuerten Wilsonkammeraufnahmen verantwortlich zu machen sind.

### § 3. Messung der Dreifachkoinzidenzen mit UX- und $RaE$ -Präparaten.

Dreifachkoinzidenzmessungen mit UX-Quellen (UX+Cerfluorid in ein  $50\ \mu$ -Glasröhrchen eingeschmolzen) wurden, wie schon erwähnt, als Kontrollversuche, bei Verwendung der  $102\ \mu$ -Al-Zählrohre mit negativem Ergebnis, ausgeführt. Während mit  $ThC''$  auf  $10^6$  Einzelstösse 83 Dreifachkoinzidenzen registriert wurden (vgl. Tabelle 2), ist mit  $UX_2$  die Häufigkeit von Dreifachkoinzidenzen zum mindesten etwa 50mal kleiner. Dagegen wurden bei Verwendung der dünnwandigeren  $12\ \mu$ -Al-Zählrohre auch mit UX-Quellen (verwendet wurde hiezu ein gerade noch sichtbares Körnchen des UX-Präparats, mit Zaponlack auf eine  $2\ \mu$ -Glimmerfolie geklebt) Dreifachkoinzidenzen registriert: auf  $10^6$  Einzelstösse entfallen  $(8,2 \pm 1,3)$  Dreifachkoinzidenzen. Mit  $ThC''$  ist bei Verwendung der gleichen Zählrohre der entsprechende Wert 193 Dreifachkoinzidenzen.

Diese Resultate sind auf Grund der oben durchgeführten Diskussion der Ursachen der  $ThC''$ -Dreifachkoinzidenzen ohne weiteres verständlich.  $UX_2$  emittiert *Konversionselektronen* einer  $800\ keV$ - $\gamma$ -Strahlung (BRADT, HEINE und SCHERRER<sup>6</sup>). Ihre Anzahl beträgt nur  $0,55 \cdot 10^{-2}$  Konversionselektronen/Zerfall, während die totale Anzahl der vom  $ThC''$  emittierten Konversionselektronen nach FLAMMERSFELD  $7,5 \cdot 10^{-2}$  Konversionselektronen/Zerfall beträgt. Die relative Häufigkeit der Dreifachkoinzidenzen, ausgelöst durch Zerfallselektron, Konversionselektron und  $L$ -Quant oder  $K$ -Augerelektron, sollte also für  $UX_2$  ungefähr 15mal geringer sein als für  $ThC''$ . Die beobachtete Häufigkeit der  $UX_2$ -Dreifachkoinzidenzen ist bei Verwendung der  $12\ \mu$ -Al-Zählrohre tatsächlich 18mal geringer als die Häufigkeit der durch Zerfallselektron, Konversionselektron und  $L$ -Quant bzw.  $K$ -Augerelektron ausgelösten  $ThC''$ -Dreifachkoinzidenzen (drei Viertel der Gesamtzahl).

Da  $UX_2$  keine  $\gamma$ -Quanten in Kaskade emittiert, muss bei Zwischenschalten von Absorbern zwischen Quelle und Zählrohre die Häufigkeit der Dreifachkoinzidenzen rasch auf Null absinken, da die Abhängigkeit der Dreifachkoinzidenz-Häufigkeit im wesentlichen durch die Absorption der weichsten Komponente, d. h. durch diejenige der  $K$ -Augerelektronen und der  $L$ -Strahlung bestimmt ist. Die Umhüllung der UX-Quelle mit einer  $15\ \mu$ -Al-Folie verringerte in der Tat den Wert der Dreifachkoinzidenzrate schon merklich, und mit den  $102\ \mu$ -Al-Zählrohren und einer in einer

50  $\mu$ -Glaskapillare eingeschlossenen UX-Quelle waren keine Dreifachkoinzidenzen mehr nachweisbar.

Wir führten noch Dreifachkoinzidenzmessungen mit RaE aus, das bekanntlich keine Kern- $\gamma$ -Strahlung emittiert und dessen Elektronenspektrum deshalb auch von Konversionselektronen vollständig frei ist. Mit RaE wurden nun in der Tat — ausser den durch Höhenstrahlung ausgelöst — auch bei Verwendung der dünnwandigen 12  $\mu$ -Zählrohre keinerlei Dreifachkoinzidenzen mehr registriert. (Daher konnten bei den Untersuchungen mit UX<sub>2</sub> RaE-Quellen für Kontrollmessungen verwendet werden.) Die relative Häufigkeit der Dreifachkoinzidenzen  $(K'''/Z)_{\text{RaE}}$  muss auf Grund des eindeutig negativen Resultats jedenfalls kleiner als  $10^{-6}$  sein.

### III. Untersuchung der Paaremission des Th(B + C + C'') mit Hilfe einer durch Zählrohrkoinzidenzen gesteuerten Wilsonkammer.

Die Versuche, die in diesem dritten Teil beschrieben werden sollen, stellen eine Fortsetzung früherer Wilsonkammer-Untersuchungen dar, die auf eine gegenüber der Theorie viel zu grosse Wahrscheinlichkeit der Emission positiv geladener Teilchen durch  $\beta$ -Strahler schliessen liessen (HEINE<sup>3</sup>). Zur Entscheidung, ob diese positiven Teilchen als Partner von Paaren auftreten, wurde die Anordnung speziell dem *Nachweis von Paaren* angepasst, indem die Expansion der Wilsonkammer, in deren Zentrum das RdTh-Präparat angebracht ist, durch *Koinzidenzen zweier in die Kammer eingebauter Zählrohre* gesteuert wird.

#### § 1. Apparatur.

Die folgende Fig. 7 gibt ein Bild der den neuen Anforderungen angepassten Wilsonkammer, deren technische Einzelheiten nur so weit kurz beschrieben werden sollen, als diese gegenüber der früher beschriebenen Wilsonkammer (HEINE<sup>3</sup>) abgeändert wurden.

Der Kammerzylinder, der vorher aus einem Glasring bestand, wurde durch einen mit zwei Ansätzen versehenen Messingring ersetzt. Als *Zählrohre* werden zwei mit Argon-Alkohol gefüllte Messingrohre von 1 mm Wandstärke und 20 mm Innendurchmesser verwendet, welche mit einer Bunadichtung in die beiden Ansätze am Wilsonkammering luftdicht eingesetzt sind. Die Fenster der beiden Zählrohre sind mit einer 25  $\mu$ -Aluminiumfolie bedeckt und kommen ganz in den beleuchteten Raum der Kammer zu liegen.



Der *Raumwinkel*, aufgespannt von einer im Zentrum der Wilsonkammer befindlichen punktförmigen radioaktiven Quelle und der für  $\beta$ -Strahlen durchlässigen Fläche eines Zählrohrs, beträgt

$$\alpha = \frac{\Omega}{4\pi} = 0,0065 \pm 0,0004.$$

Zur Anbringung des *Präparats* wurde in die Mitte des Glasdeckels der Wilsonkammer ein Loch von 0,8 mm Durchmesser gebohrt, in das eine nach dem Wilsonkammerinnern abgeschlossene Glaskapillare von  $25\ \mu$  Wandstärke luftdicht eingekittet wurde. Das bei den Messungen verwendete RdTh-Präparat befindet sich in einer zweiten Glaskapillare von  $15\ \mu$  Wandstärke, welche von aussen in die erste Kapillare hineingeschoben und wieder

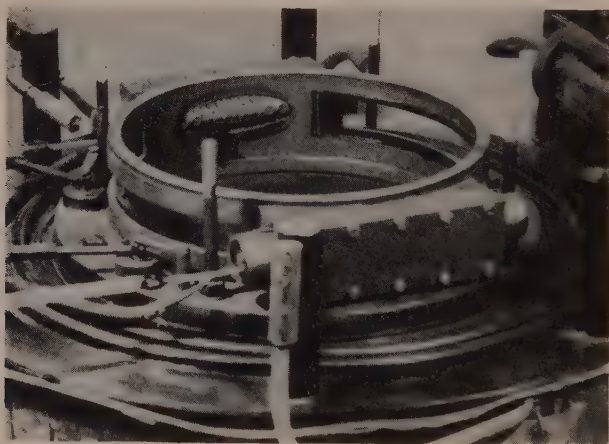


Fig. 7.

Wilsonkammer geöffnet, mit eingebauten Zählrohren.

leicht entfernt werden kann. Eine Präparathalterung mit einer Wandstärke von weniger als  $40\ \mu$  Glas würde noch einen Teil der vom Präparat ausgesandten  $\text{ThC}'$ - $\alpha$ -Teilchen in die Kammer gelangen lassen.

Die Abänderung des *Expansionsmechanismus* zwecks Erreichung einer möglichst rasch nach der Koinzidenz erfolgenden Expansion geschah dadurch, dass das früher von einem Topfmagneten gesteuerte Expansionsventil, dessen Trägheit bei den Serienaufnahmen nicht störend wirkte, durch eine leicht gebaute Aluminiumklappe der von STREET und STEVENSON<sup>19)</sup> angegebenen Bauart ersetzt wurde. Der Topfmagnet dient jetzt nur noch zum Schliessen des bei der Expansion frei fallenden Verschlusses.

Als *Koinzidenzverstärker* dient ein nach den Angaben von BRADT und SCHERRER<sup>20)</sup> gebautes Gerät mit einem Auflösungsvermögen  $\tau < 10^{-6}$  sec. Ein einfaches Umschalten gestattet es, die Schwingungsdauer des als Zählstufe verwendeten Multivibrators zu verlängern und den Verstärkerausgang gleichzeitig über eine Kapazität mit der Schaltautomatik zu verbinden. Die Verlängerung der Ansprechdauer des Multivibrators ist nicht zur Auslösung der Expansion selbst, sondern zur Einschaltung eines Relais notwendig, welches den weiteren Ablauf des Schaltvorgangs einleitet.

Die früher verwendete *Wilsonkammer-Automatik*, welche für die Belichtung, die Zwischenexpansion und den Filmvorschub sorgt, konnte im wesentlichen beibehalten werden. Der Haltemagnet für die Expansionsklappe wird vom Anodenstrom einer zusätzlichen Elektronenröhre gespeist, deren Gitter mit dem Ausgang des Koinzidenzverstärkers verbunden ist. Bei einer Zählrohrkoinzidenz wird dieses Gitter so stark negativ, dass dadurch die Expansion unmittelbar ausgelöst wird. Die Zeit, die zwischen einer Koinzidenz und dem Ende der Expansion vergeht, wurde zu  $\sim 0,01$  sec bestimmt. Die Aufnahmen der durch Höhenstrahlen ausgelösten Koinzidenzen zeigen, dass diese Zeit für die vorliegenden Untersuchungen nicht zu lang ist. Die Schaltautomatik setzt die Wilsonkammer 40 sec nach erfolgter Expansion wieder in Bereitschaft: während dieser Zeit kann die Kammer durch eine Koinzidenz nicht ausgelöst werden.

Für das *Magnetfeld* ist jetzt ein Strom von 1 Amp. pro 11 Örsted erforderlich, der von einer als Generator verwendeten Schweissgruppe\*), welche eine Dauerbelastung bis zu 30 Amp. gestattet, geliefert wird. Es ist dafür gesorgt, dass die Temperatur der Wilsonkammer konstant bleibt, wodurch ihr gleichmässiges Arbeiten während längerer Zeit gewährleistet wird.

## § 2. *Wilsonkammeraufnahmen.*

Bei den Wilsonkammeraufnahmen soll die Zahl der vom Th(B+C+C'')-Präparat verursachten Koinzidenzen möglichst gross sein gegenüber dem von der Höhenstrahlung bewirkten Untergrund. Andererseits muss die auf den Aufnahmen vorhandene Spurenzahl die einzelnen Bahnen noch deutlich voneinander getrennt erkennen lassen. Die Bahnen von Teilchen, welche die Koinzidenz ausgelöst

---

\*) Der Firma *Brown Boveri & Co.*, Baden, sei an dieser Stelle für die Überlassung der Schweissgruppe der beste Dank ausgesprochen.

haben, unterscheiden sich durch ihren leicht „diffusen“ Charakter von den übrigen Spuren und sind zudem nur in der Richtung Quelle – Zählrohr zu erwarten. Das RdTh-Präparat konnte deshalb etwa doppelt so stark als in früheren Arbeiten gewählt werden, wo pro Aufnahme nur 5–6 für die Ausmessung verwertbare Elektronenbahnen vorhanden waren. Der Höhenstrahlungs-Nulleffekt,  $K_0 = (4,1 \pm 0,3)$  Höhenstrahlungs-Koinzidenzen/h, ist damit immer noch von der gleichen Grössenordnung wie der zu erwartende vom Präparat verursachte Effekt.

Um die Empfindlichkeit der neuen Wilsonkammeranordnung zu prüfen und um die Art der Aufnahmen, die durch Höhenstrahlkoinzidenzen ausgelöst werden, näher kennenzulernen, wurden

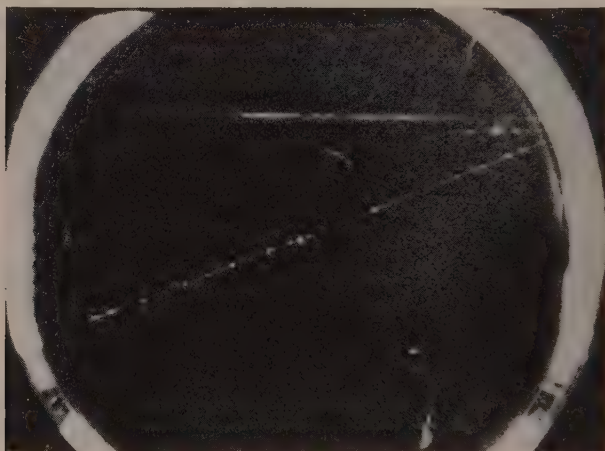


Fig. 8.

*Höhenstrahlteilchen, eine Koinzidenz auslösend.*

Beim linken Zählrohr zeichnen sich die mit der Aluminiumfolie bedeckten Löcher deutlich ab. Die Spur ist so scharf, wie man es noch für die Bahn eines Teilchens erwarten kann, das die Wilsonkammer *vor* der Expansion durchlaufen hat. Die längs der Bahn gebildeten Ionen sind bereits etwas diffundiert, so dass solche Spuren infolge ihres diffusen Charakters deutlich als „alte Spuren“ markiert sind.

zunächst ohne Anbringung eines Präparats 87 Aufnahmen gemacht. Auf 35 % dieser Aufnahmen sind keine Bahnen — auch keine Bruchstücke von Bahnen — zu erkennen, während die auf allen Aufnahmen vorhandene gleichmässige Verteilung von feinen Tröpfchen anzeigt, dass die Kammer richtig expandiert hat. Auf 45 % der Bilder ist je eine quer durch die Wilsonkammer gehende Elektronenbahn sichtbar (Fig. 8). (Wenn sich ein RdTh-Präparat der später verwendeten Intensität in der Kammer befände, würden

diese Bahnen neben den Zerfallselektronen noch deutlich als die Spuren von koinzidenzauslösenden Höhenstrahlen zu erkennen sein.) Die restlichen 20% der Aufnahmen sind Bilder, auf denen Schauer sichtbar sind, von denen rund die Hälfte die Wilsonkammer vertikal durchdringt. Letztere wären auf den Aufnahmen mit Präparat nicht mehr als Schauer identifizierbar.

Mit einem *RdTh-Präparat*, welches in den Zählrohren im Mittel  $Z-Z_0 = 82$  Einzelstöße pro Minute und bei einem Magnetfeld von 220 Östed  $K-K_0 = 3,8$  Koinzidenzen pro Stunde auslöst, wurden in insgesamt 71 Stunden auf 15 Filmen 375 gut auswertbare Stereoaufnahmen gemacht. Die relative Häufigkeit der verschiedenen möglichen Ursachen der Koinzidenzauslösung bei der verwendeten Anordnung wird in § 3 auf Grund besonderer Messungen näher diskutiert werden. Das Resultat der Auswertung der 375 Aufnahmen ist im folgenden zusammengestellt.

Ursache der Expansion	Anzahl Bilder
I. <i>Höhenstrahlung, Reflexion von Elektronen an der Kammerwand.</i>	
Höhenstrahl-Schauer (darunter 6 grosse Schauer mit mehr als 10 Teilchen) . . . . .	24
Nicht die Quelle passierende Einzelspuren durch beide Zählrohre . . . . .	161
II. <i>Nicht deutlich erkennbar.</i>	
( $\beta, \gamma$ )-Koinzidenzen, vertikale Höhenstrahl-Schauer, Konversionselektron plus gleichzeitig ausgesandtes Zerfallselektron . . . . .	179
III. <i>Leicht diffuse, d. h. „alte“ Spuren in Richtung eines der Zählrohre sichtbar, die als Spuren positiver Teilchen angesehen werden könnten (Fig. 9a) . . . . .</i>	11
Totalzahl der ausgewerteten Aufnahmen . . . . .	375

Auf den Aufnahmen sind ausserdem sieben „zufällige“ positive Spuren zu beobachten, die nicht verbreitert erscheinen (Fig. 9b); diese Teilchen können die Kammer also nicht vor erfolgter Expansion durchlaufen haben. Im Gegensatz zu den alten positiven Spuren, die alle in Richtung der Zählrohre gehen, besteht für diese „frischen“ Spuren keinerlei Vorzugsrichtung. Ihre relative Häufigkeit ist vergleichbar mit derjenigen, welche früher bei den Aufnahmeserien mit periodischer Expansion beobachtet wurde.

Zur Unterdrückung der durch Streuung und Reflexion von Elektronen verursachten Expansionen wurde das Präparat in der



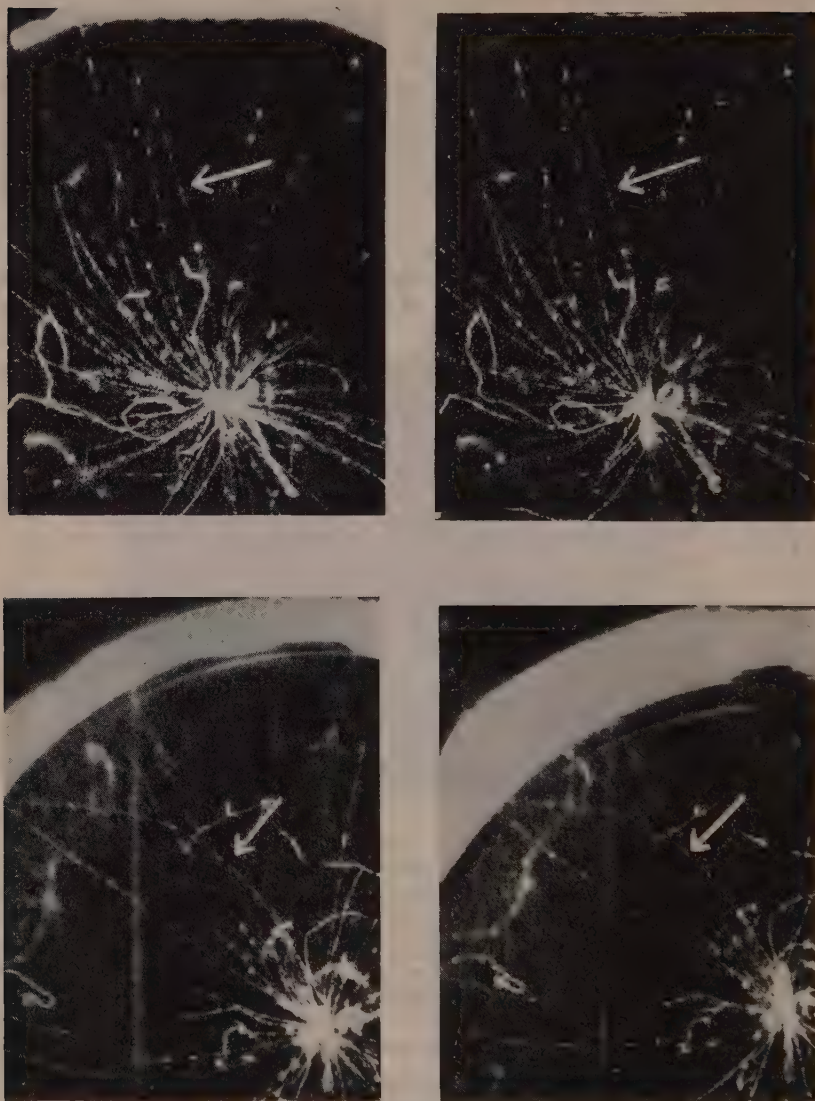


Fig. 9.

- a) Leicht diffundierte „positive“ Spur eines koinzidenzauslösenden Teilchens.  
 b) Neue „zufällige“ positive Spur.

Mitte einer mit einer genügend grossen Öffnung versehenen 3 mm dicken *Aluminiumwand* befestigt. Diese halbiert die Kammer parallel zu den Zählrohren so, dass keine Elektronen mehr von einer Kammerhälfte in die jenseits der Wand liegende gelangen können. Auf 120 Bildern, die in dieser Anordnung bei einer totalen Aufnahmedauer von 32 Stunden gemacht wurden, ist ausser vier „neuen“ keine positive Spur zu beobachten.

### § 3. *Relative Häufigkeit der verschiedenen Ursachen der Expansionsauslösung.*

Zur Bestimmung der relativen Häufigkeit der verschiedenen Ursachen der Expansionsauslösung wurden die im folgenden beschriebenen reinen Zählrohrmessungen mit einer gegenüber dem für die Aufnahmen verwendeten Präparat 25mal intensiveren RdTh-Quelle ausgeführt.

a) *Reflexion von Elektronen und Auslösung von Sekundärelektronen an den Wänden der Wilsonkammer:* Durch Messung der Einzelstosszahl — bei offener und durch den Glasdeckel geschlossener Wilsonkammer — wurde die relative Anzahl der am Kammerdeckel reflektierten Elektronen zu annähernd 6% bestimmt. Von den Seitenwänden und vom Boden der Wilsonkammer werden je etwa gleich viel Elektronen reflektiert.

Mit der oben erwähnten Aluminiumwand quer durch die Kammer ergibt sich — bei Messungen ohne Magnetfeld — als Wert der Rate der vom Präparat ausgelösten *Koinzidenzen*

$$R_{\text{Th(B+C+C'')}} = (4,5 \pm 0,2) \cdot 10^{-4}.$$

Die Koinzidenzrate mit der frei in der Wilsonkammermitte befindlichen Quelle ist mehr als doppelt so gross:

$$R_{\text{total}} = (11,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-4}.$$

Rund 60% aller vom RdTh-Präparat verursachten Koinzidenzen werden also durch Sekundärelektronen ausgelöst. (Die im *Präparatträger* ausgelösten schnellen Sekundärelektronen können bei der verwendeten Zählrohranordnung nicht direkt zu Koinzidenzen Anlass geben, weil ihre Bahnen nahezu senkrecht zu denen der stossenden Elektronen verlaufen.)

b) *( $\beta, \gamma$ )-Koinzidenzen:* Eines der beiden Zählrohre wird mit einem 4 mm-Aluminium-Absorber bedeckt, so dass keine  $\beta$ -Strahlen

mehr in dieses Zählrohr gelangen können. Diese Messung ergibt für die mit unbedecktem Zählrohr auftretende  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzrate

$$R_{(\beta, \gamma)} = (2,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-4}.$$

c) *Konversionselektronen der  $\text{Th}(\text{B}+\text{C}+\text{C}'')$ - $\gamma$ -Linien:* Die relative Anzahl der durch die Konversion der  $\text{Th}(\text{B}+\text{C}+\text{C}'')$ - $\gamma$ -Linien verursachten Koinzidenzen (s. Teil II, § 1) berechnet sich für unsere Wilsonkammeranordnung unter Berücksichtigung der Absorption in der Glaskapillare, dem Gas in der Kammer und der Zählrohrwand zu

$$R_{\text{Konv}} = \left( \frac{K_{\text{Konv}}}{Z_{\text{Th}(\text{B}+\text{C}+\text{C}'')}} \right)_{100 \mu \text{ Al}} = 0,9 \cdot 10^{-4}.$$

Es ergibt sich also die folgende Zusammenstellung:

Art der Auslösung	Koinzidenzrate $R = \frac{K'}{Z_{\text{Th}(\text{B}+\text{C}+\text{C}'')}}}$
Koinzidenzen verursacht durch Streu- und Sekundärelektronen . . . . .	$(7,3 \pm 0,6) \cdot 10^{-4}$
$(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen . . . . .	$(2,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-4}$
Koinzidenzen verursacht durch Internal Conversion . . . . .	$(0,9 \pm 0,2) \cdot 10^{-4}$
Totale Koinzidenzrate . . . . .	
$R_{\text{total berechnet}}$ . . . . .	$(10,8 \pm 0,7) \cdot 10^{-4}$
$R_{\text{total experimentell}}$ . . . . .	$(11,8 \pm 0,4) \cdot 10^{-4}$

Die Summe der  $(\beta, \gamma)$ -Koinzidenzen, der durch Streu- und Sekundärelektronen und der durch Konversionselektronen verursachten Koinzidenzen stimmt also mit der gemessenen Koinzidenzrate praktisch überein.

d) *Einfluss des Magnetfeldes:* Untersuchen wir noch den Einfluss des Magnetfeldes auf die Koinzidenzrate. Fig. 10 stellt die gemessenen Einzelstosszahlen und Koinzidenzraten in Funktion des Magnetfeldes für beide Präparatanordnungen dar. Die Abnahme der ohne Trennwand gemessenen Koinzidenzen (Kurve 3) mit wachsendem Magnetfeld ist bedingt durch die Abnahme der durch reflektierte Elektronen ausgelösten Koinzidenzen. Bei der Messung mit der Trennwand (Kurve 4) bleibt die Koinzidenzrate bis ca. 220 Örsted konstant, weil diejenigen Elektronen, welche durch ein Magnetfeld  $\leq 220$  Örsted an der Erreichung des Zählrohrs verhindert werden, so wenig Energie ( $\leq 160$  keV) besitzen, dass sie infolge der Absorption auch bei  $H = 0$  nicht in das Innere des Zählrohrs gelangen.

Ein Magnetfeld von  $H = 220$  Örsted, reduziert also einzig die Rate der durch gestreute und reflektierte Elektronen ausgelösten Koinzidenzen, und zwar von  $R = 7,3 \cdot 10^{-4}$  für  $H = 0$  auf  $R = 5,3 \cdot 10^{-4}$  für  $H = 220$  Örsted.

#### § 4. Diskussion der positiven Spuren.

Wie aus der in § 2 enthaltenen Zusammenstellung hervorgeht, sind unter den 375 ausgewerteten Aufnahmen auf 11 Aufnahmen „positive“ Spuren leicht diffusen Charakters sichtbar (vgl. das in Fig. 9a reproduzierte Beispiel), die als Bahnen von der Quelle emittierter, eines der Zählrohre durchsetzender Teilchen *erscheinen*. Das Fehlen solcher positiver Spuren auf den Aufnahmen mit Trennwand legt die Vermutung nahe, dass diese Spuren durch an einem

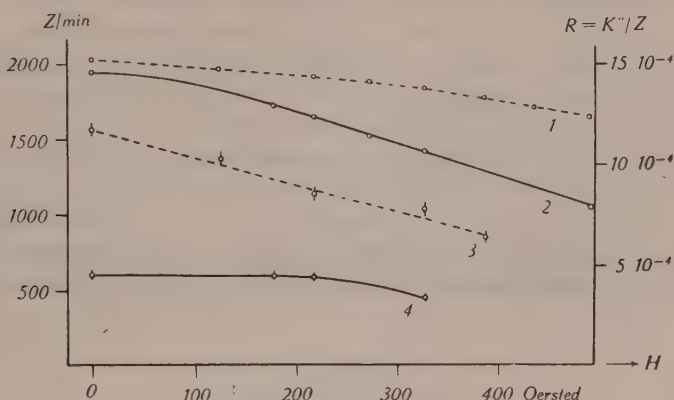


Fig. 10.

Einzelstöße und Koinzidenzraten des  $\text{Th}(B + C + C'')$ -Präparates in Funktion von  $H$ .

Kurve 1: Einzelstöße mit freier Quelle

Kurve 2: Einzelstöße mit Quelle in der Trennwand

Kurve 3: Koinzidenzrate mit freier Quelle

Kurve 4: Koinzidenzrate mit Quelle in der Trennwand.

Zählrohr reflektierte Elektronen, die die Quelle durchqueren oder nahe an der Quelle vorbeigehen, verursacht werden.

Eine Abschätzung, in welchem Mass die reflektierten Elektronen und die Höhenstrahlen positive Spuren vortäuschen können, bietet die „Methode der fiktiven Quellen“. Da die durch beide Zählrohre gehenden Einzelspuren nicht isotrop über die Kammer verteilt sind, hat es keinen Sinn, eine fiktive Quelle irgendwo in der Wilsonkammer anzunehmen, sondern es sind diejenigen quer durch die Kammer verlaufenden Spuren koinzidenzauslösender



Teilchen auszuzählen, welche zwei Kreise von je der Grösse des Präparatflecks passieren, deren Mittelpunkte parallel zu den Zählrohren um den Präparatfleck-Durchmesser (auf den Aufnahmen durch Reflexion des Lichtes an der Quelle auf 4 mm verbreitert) aus der Kammermitte verschoben sind. Durch die beiden so definierten fiktiven Quellen verlaufen total 17 Spuren koinzidenzauslösender Teilchen mit deutlich feststellbarer Krümmung. Innerhalb der Statistik stimmt diese Zahl mit der zu erwartenden doppelten Anzahl der von der Quelle ausgehenden positiven Spuren überein. Die ausgesprochene Vermutung, die positiven Spuren würden von reflektierten Elektronen vorgetäuscht, wird also bestätigt.

Falls dieser Schluss richtig ist, muss bei der Mehrzahl der aus der Quelle kommenden positiven Spuren eine negative Spur in der

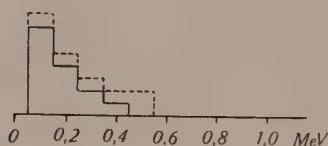
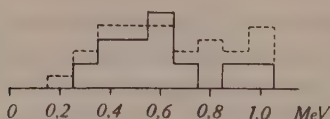


Fig. 11.

- a) Ausgezogen: Spektrum der 7 „zufälligen“ positiven Spuren  
Gestrichelt: Spektrum von 10 positiven Spuren nach Heine.



- b) Ausgezogen: Spektrum der 11 „alten“ positiven Spuren durch die Quelle  
Gestrichelt: Spektrum der 17 Spuren durch zwei fiktive Quellen neben dem Sitz des Präparats.

direkten Fortsetzung nach hinten festzustellen sein. Dies ist auch tatsächlich bei acht der elf Bahnen der Fall. Die restlichen drei Spuren können dadurch erklärt werden, dass die Teilchen die Quelle selbst durchsetzen und dabei eine so starke Streuung erleiden, dass man die beiden Teile der Spur nicht mehr als die Bahn eines Teilchens erkennt.

Eine weitere Bestätigung der Annahme, dass die alten positiven Spuren vorgetäuscht sind, ergibt das *Energiespektrum*. Die aus den gemessenen Bahnkrümmungen berechneten Energien der *zufälligen*,

nicht in Koinzidenz auftretenden positiven Teilchen sind in Fig. 11a ausgezogen gezeichnet. Wie aus der Figur zu erkennen ist, sind sie in guter Übereinstimmung mit der gestrichelt gezeichneten, früher gefundenen Energieverteilung. Das Spektrum der „alten“ positiven Spuren (Fig. 11b, ausgezogen) hingegen ist bedeutend energiereicher: es liegt im gleichen Energiebereich wie das gestrichelt miteingezeichnete Spektrum der 17 Teilchen, welche die beiden fiktiven Quellen durchsetzen. Dies ist nicht anders zu erwarten, da diese alten positiven Spuren ja gar nicht reell sind. Es ist auch leicht einzusehen, dass bei der vorliegenden geometrischen Anordnung nur Teilchen mit hoher Energie von einem Zählrohr zum andern gelangen und dabei die Quelle passieren können, während die stark gekrümmten Bahnen der energieärmern Teilchen näher am Rand verlaufen.

Alle diese Beobachtungen zeigen, dass die positiven Spuren, welche man den koinzidenzauslösenden Teilchen zuordnen muss, *nicht von positiven Teilchen, die vom Präparat emittiert werden, herrühren; d. h. von  $\text{ThC}''$  werden keine positiven Teilchen in einem Mehrfachemissionsprozess ausgesendet.* Jedoch wird das Vorhandensein zufälliger, d. h. nicht mit der Koinzidenzauslösung zusammenhängender positiver Spuren in der Wilsonkammer wiederum festgestellt und kann nicht erklärt werden. In diesem Zusammenhang sei auch auf eine neuere Untersuchung der Emission positiver Teilchen durch  $\text{P}^{32}$  von SMITH und GROETZINGER<sup>21)</sup> hingewiesen.

### Literaturverzeichnis.

- 1) H. BRADT, H. G. HEINE und P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **16**, 491 (1943).
- 2) H. BRADT, *Helv. Phys. Acta* **17**, 59 (1944).
- 3) H. G. HEINE, *Helv. Phys. Acta* **17**, 273 (1944).
- 4) A. I. ALICHANOW, A. I. ALICHANIAN und M. S. KOSODAEW, *Journ. de physique* **7**, 163 (1936).
- 5) S. BENEDETTI, *Journ. de physique* **1**, 265 (1940).
- 6) H. BRADT, H. G. HEINE und P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **16**, 455 (1943).
- 7) J. C. JAEGER und H. R. HULME, *Proc. Roy. Soc.* **148**, 708 (1935).
- 8) J. CHADWICK, P. M. S. BLACKETT und G. P. S. OCCHIALINI, *Proc. Roy. Soc.* **144**, 235 (1934).
- 9) A. FLAMMERSFELD, *Zts. f. Phys.* **114**, 227 (1939).
- 10) H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER, *Helv. Phys. Acta* **19**, 77 (1946).
- 11) R. ARNOULT, *Annales de physique* **12**, 241 (1939).
- 12) J. ITOH und Y. WATASE, *Proc. Phys.-Math. Soc. of Japan* **23**, 142 (1941).

- <sup>13)</sup> C. D. ELLIS, Proc. Roy. Soc. **138**, 318 (1932).
- <sup>14)</sup> S. C. CURRAN, P. I. DEE und J. E. STROTHERS, Proc. Roy. Soc. **174**, 546 (1940).
- <sup>15)</sup> W. HEITLER, The Quantum Theory of Radiation, Oxford 1936.
- <sup>16)</sup> E. BLEULER und W. ZÜNTI, Helv. Phys. Acta **19**, 375 (1946).
- <sup>17)</sup> J. R. OPPENHEIMER, Proc. of Cambr. Phil. Soc. **32**, 328 (1936).
- <sup>18)</sup> H. BRADT, J. HALTER, H. G. HEINE und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **18**, 457 (1945).
- <sup>19)</sup> J. C. STREET und E. C. STEVENSON, Rev. Sc. Inst. **7**, 347 (1936).
- <sup>20)</sup> H. BRADT und P. SCHERRER, Helv. Phys. Acta **16**, 251 (1943.)
- <sup>21)</sup> L. SMITH und G. GROETZINGER, Phys. Rev. **70**, 96 (1946).

# Über den Mechanismus der elektrischen Leitfähigkeit des Siliciumcarbids

von G. Busch und H. Labhart.

(2. IX. 1946.)

*Zusammenfassung.* An einkristallinen Proben von SiC wird der HALLEffekt im Temperaturbereich von 100—1100° K gemessen. Zusammen mit Leitfähigkeitsmessungen von BUSCH an denselben SiC-Proben können die folgenden Schlüsse auf den Leitungsmechanismus des Siliciumcarbids gezogen werden:

1. Die grünen SiC-Kristalle sind Überschusshalbleiter, die schwarzen dagegen Defektleiter.

2. Zur Leitfähigkeit tragen die Elektronen von zwei verschiedenen Energieniveaux bei, über deren Lage und Natur Aussagen gemacht werden können.

3. Bei hohen Temperaturen ist das Elektronengas in Entartung begriffen. Es wird eine Erweiterung der WILSONschen Theorie der Halbleiter für den Fall beginnender Entartung gegeben, welche den Temperaturverlauf der Leitfähigkeit bei hohen Temperaturen, insbesondere die Lage der Leitfähigkeitsmaxima erklärt.

4. Die Freiheitszahl der Elektronen des Leitungsbandes kann bestimmt und die Zahl der Störstellen der Kristalle abgeschätzt werden.

5. Die Relaxationszeit ergibt sich von der gleichen Größenordnung wie bei Metallen.

## I. Einleitung.

Die elektrische Leitfähigkeit des Siliciumcarbids (SiC) ist von SEEMANN<sup>1)</sup>, SEARS und BECKER<sup>2)</sup>, VOELKL<sup>3)</sup>, GUILLERY<sup>4)</sup>, KURTSCHATOW, KOSTINA und RUSINOW<sup>5)</sup>, HENNINGER<sup>6)</sup> und in jüngster Zeit von BUSCH<sup>7)</sup> untersucht worden. Während die Resultate der älteren, an SiC-Pulvern nach verschiedenen Methoden durchgeführten Messungen stark streuen, geht aus den neueren Untersuchungen an zahlreichen einkristallinen Proben hervor, dass in bezug auf die Volumenleitfähigkeit des SiC das OHmsche Gesetz über einen Strombereich von mehreren Zehnerpotenzen ausnahmslos gültig ist. Die Temperaturabhängigkeit der elektrischen Leit-

<sup>1)</sup> SEEMANN, Phys. Zs. **30**, 194 (1929).

<sup>2)</sup> SEARS und BECKER, Phys. Rev. **40**, 1055 (1932).

<sup>3)</sup> VOELKL, Ann. d. Phys. **14**, 193 (1932).

<sup>4)</sup> GUILLERY, Ann. d. Phys. **14**, 216 (1932).

<sup>5)</sup> KURTSCHATOW, KOSTINA und RUSINOW, Phys. Zs. d. Sow.-Union **7**, 129 (1935).

<sup>6)</sup> HENNINGER, Ann. d. Phys. **28**, 245 (1937).

<sup>7)</sup> BUSCH, H. P. A. **19**, 167 (1946).



fähigkeit  $\sigma$  zeigt den für Halbleiter typischen Verlauf, d. h. sie ist im wesentlichen proportional  $T^{-p} e^{-\frac{\varepsilon}{2kT}}$ . Dabei bedeuten  $T$  die absolute Temperatur,  $\varepsilon$  die scheinbare Aktivierungsenergie und  $k$  die BOLTZMANNkonstante.

Die von BUSCH erhaltenen experimentellen Kurven weisen aber folgende Eigentümlichkeiten auf:

1) Das gemäss dem Gesetz  $\sigma \sim T^{-p} e^{-\frac{\varepsilon}{2kT}}$  auftretende Maximum in der elektrischen Leitfähigkeit zeigt sich schon bei viel tieferen Temperaturen, als mit dem Wert  $p = 3/4$ , welcher aus der WILSONschen Theorie<sup>1)</sup> der Halbleiter folgt, zu erwarten wäre.

Bedeutet  $e$  die Elektronenladung,  $n$  die Elektronenmasse,  $\tau$  die Relaxationszeit,  $F$  die Freiheitszahl und  $n$  die Zahl der Leitungselektronen, so stellt sich  $\sigma$  dar als

$$\sigma = \frac{e^2}{m} \tau F n.$$

Hieraus geht hervor, dass die erwähnte Diskrepanz bei hohen Temperaturen zwei Gründe haben kann: Erstens eine Unstimmigkeit der Theorie<sup>2)</sup> für den Temperaturgang der Relaxationszeit  $\tau$ ; zweitens eine Unstimmigkeit der theoretisch errechneten Temperaturabhängigkeit der Zahl der Elektronen im Leitungsband. In der vorliegenden Arbeit soll diese Frage beantwortet werden.

2) Die meisten  $\sigma$ -Kurven (besonders diejenigen der Kristalle des schwarzen SiC) zeigen bei Temperaturen von ca. 200° K einen deutlichen Knick in dem Sinne, dass bei tieferen Temperaturen eine kleinere scheinbare Aktivierungsenergie  $\varepsilon$  in die  $\sigma$ -Formel eingeht, als bei hohen. Infolge der grossen Verschiedenheit der  $\varepsilon$ -Werte vor und nach dem Knick muss angenommen werden, dass zwei Störstellenniveaux verschiedener Energie für diese Erscheinung verantwortlich sind. An Hand von Leitfähigkeitsmessungen allein können aber keine Schlüsse über die Natur und Zahl der Störatome gezogen werden. Insbesondere ist es nicht möglich, zu entscheiden, ob es sich um Elektronenspender-Niveaux oder um Elektronenempfänger-Niveaux handelt.

Um Näheres über den Leitungsmechanismus des SiC aussagen zu können, ist es nötig, noch weitere, mit der Leitfähigkeit zusammenhängende Erscheinungen zu untersuchen. Sowohl aus experimentellen, wie auch theoretischen Erwägungen ist die Unter-

<sup>1)</sup> WILSON, Proc. Roy. Soc. **133**, 458 (1931); **134**, 277 (1932); **136**, 487 (1932).

<sup>2)</sup> FRÖHLICH, Elektronentheorie der Metalle S. 238 (1936).

suchung des HALL-effektes besonders aufschlussreich. Die HALL-konstante  $R$  ist unabhängig von der Relaxationszeit  $\tau$  und gestattet daher den Einfluss der Temperatur auf  $\tau$  und die Zahl  $n$  der Leitungselektronen voneinander zu trennen. Andererseits gibt das Vorzeichen der HALLkonstanten Aufschluss darüber, ob die Elektronen eines nahezu leeren oder die Löcher eines nahezu vollbesetzten Energiebandes den Elektrizitäts-transport bewirken.

Aus diesen Gründen wurde an den gleichen SiC-Proben, deren elektrische Leitfähigkeit gemessen worden war, der HALL-effekt im selben Temperaturintervall von  $100^{\circ}$ — $1100^{\circ}$  K bestimmt.

Durch Kombination der  $R$ - und  $\sigma$ -Messungen lassen sich die oben aufgeworfenen Fragen weitgehend abklären.

## II. Messung des HALL-effektes.

### I. Messmethoden.

Bei der Messung des HALL-effektes an Halbleitern muss vor allem auf die folgenden Schwierigkeiten geachtet werden:

1) Die Strombelastung der Kristalle mit relativ hohem Widerstand darf nicht zu gross gewählt werden, weil sich sonst infolge der JOULEschen Wärme die Temperatur des Kristalls merklich erhöht.

Die obere Grenze der zulässigen Stromdichte erweist sich bei Zimmertemperatur von der Grössenordnung einiger Zehntel Amp/cm<sup>2</sup>. Damit werden die HALLspannungen bei  $R \cdot \sigma = 10 \frac{\text{cm} \cdot \text{sec}^{-1}}{\text{Volt cm}^{-1}}$  und einem Querschnitt der Proben von ca.  $1 \times 1 \text{ mm}^2$  einige  $10^{-5}$  Volt.

An Hand von Leitfähigkeitsmessungen bei verschiedenen Strombelastungen wird, wenn nötig, der maximal zulässige Strom bestimmt. Bei denjenigen Messpunkten, wo  $R \cdot \sigma = 1$  ist, muss diese Grenze überschritten werden, da die HALLspannungen zu klein werden, um gemessen werden zu können. In diesen Fällen wird gleichzeitig mit der HALLkonstanten die Leitfähigkeit bestimmt. Durch Eingehen mit diesem Wert in die bei kleinen Strömen gemessene Leitfähigkeitskurve ergibt sich dann die effektive Temperatur.

2) Infolge der besonders bei tiefen Temperaturen sehr kleinen Leitfähigkeiten der Kristalle und der hohen Übergangswiderstände zwischen Sonde und Siliciumcarbid steigt der innere Widerstand des HALLkreises oft bis  $10^9$  Ohm und höher. Dadurch ist man gezwungen, von der bei den Metallen üblichen Kompensations-

methode abzugehen und diese sehr kleinen Potentialdifferenzen elektrometrisch zu messen. Da auch die empfindlichsten Quadrant-elektrometer sich kaum bis zu der hier erforderlichen Empfindlichkeit von mindestens  $5 \cdot 10^{-6}$  Volt justieren lassen, so wird ein unten beschriebener Elektrometerverstärker gebaut, der diese Empfindlichkeit zu erreichen gestattet.

3) Gleichzeitig mit dem HALLEffekt tritt immer der ETTINGSHAUSENEffekt, d. h. eine transversale Temperaturdifferenz des stromdurchflossenen Stäbchens im Magnetfeld auf. Diese Temperaturdifferenz wirkt in zwei Hinsichten störend: Erstens ist die HALLkonstante bei Halbleitern wesentlich verschieden, wenn die ETTINGSHAUSEN-Temperaturdifferenz auftritt (adiabatischer HALLEffekt), als bei isothermem Stäbchen (isothermer HALLEffekt). Die theoretischen Formeln für die HALLkonstante sind meistens für den isothermen Fall gültig. Wir müssen daher schon aus diesem Grund danach trachten, den ETTINGSHAUSENEffekt zu unterdrücken. Zweitens entstehen zwischen Kristall und Sonden bei Anwesenheit des ETTINGSHAUSENEffektes Thermospannungen, die bei der grossen Thermokraft der Halbleiter gegen Metalle die HALLspannung wesentlich fälschen können.

Um den transversalen Temperaturgradienten auszuschliessen, kann man auf zwei Arten vorgehen. Man kann den Kristall in einem Flüssigkeitsbad konstanter Temperatur genügend stark kühlen; es ist aber auch möglich, wie das von ZAHN<sup>1)</sup> und anderen zur Unterscheidung des isothermen und adiabatischen HALLEffektes getan wurde, die Messungen mit Wechselstrom durchzuführen. Während nach Untersuchungen von SMITH<sup>2)</sup> der HALLEffekt bis zur Frequenz von  $10^5$  Hertz trägheitsfrei ist, zeigt der ETTINGSHAUSENEffekt besonders bei breiten Platten eine Einstellzeit von mehreren Sekunden. Bei den von uns verwendeten SiC-Stäbchen lässt sie sich zu grössenordnungsmässig 0,1 sec abschätzen.

Weil bei sehr hohen und sehr tiefen Temperaturen (über  $450^\circ\text{K}$  und unter  $150^\circ\text{K}$ ) die Methode des Flüssigkeitsbades entweder unmöglich oder zum mindesten unpraktisch ist, so wird zum sicheren Ausschalten einer Störung durch ETTINGSHAUSENEffekt überall dort, wo es möglich ist, die Wechselstrommethode angewandt. Sie hat den Vorteil grosser Empfindlichkeit und Bequemlichkeit, da die sehr kleinen HALLwechselspannungen in fast beliebig vielen Stufen verstärkt werden können, dagegen auch den Nachteil, dass der Eingangswiderstand eines Wechselstromverstärkers

<sup>1)</sup> ZAHN, Ann. d. Phys. **47**, 279 (1915).

<sup>2)</sup> SMITH, Phys. Rev. **35**, 81 (1912).

infolge der unvermeidlichen Abschirmkapazitäten nicht beliebig hoch gemacht werden kann. Bei tiefen Temperaturen muss daher doch die Gleichstrommethode angewandt werden. Dabei erweist sich durch Vergleich mit den Wechselstrommessungen und durch Eintauchen des Kristalls in gekühltes Pentan, dass die allseitige Kühlung durch den Wasserstoffstrom des Gaskryostaten (Beschreibung siehe unter Apparaturen) genügt, die Störungen durch den ETTINGSHAUSENEffekt zu unterdrücken.

4) Die Elektrodenanordnung bei HALLeffektmessungen ist gewöhnlich so, dass auf der einen Längsseite des Kristalls zwei Sonden  $S_1$  und  $S_2$  (siehe Fig. 1), auf der andern dazwischenliegend

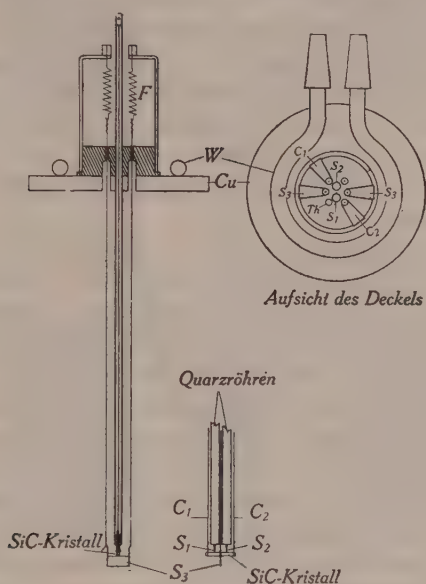


Fig. 1.

Kristallhalter und Sondenanordnung.

eine HALLsonde  $S_3$  angebracht sind. Mit einem Potentiometer kann zwischen den beiden zuerst erwähnten Elektroden bei stromdurchflossenem Kristall und ausgeschaltetem Magnetfeld der Äquipotentialpunkt zur dritten Elektrode  $S_3$  gesucht werden. Dadurch wird bewirkt, dass beim Einschalten des Magnetfeldes nur die HALLspannung zur Messung gelangt. Im vorliegenden Fall muss jedoch das Potentiometer einen Widerstand von ca.  $10^9$  Ohm haben, damit es bei grossen Sondenwiderständen die Abgleichung erlaubt. Bei den Wechselstrommessungen kann ein solches hoch-



ohmiges Potentiometer leicht durch zwei hintereinander geschaltete Drehkondensatoren realisiert werden. Für Gleichspannung gelang es nicht, ein genügend hochohmiges Potentiometer von den in diesem Fall notwendigen sehr guten Eigenschaften zu konstruieren. Man sieht sich daher genötigt, die dritte HALLelektrode möglichst genau gegenüber der einen der zwei andern anzusetzen, und den kleinen verbleibenden Spannungsabfall am stromdurchflossenen Kristall mit einer Hilfsspannung zu kompensieren.

## II. Apparaturen.

1) Kristallhalterung. Bei der Konstruktion der Kristallhalterung muss darauf geachtet werden, dass die für die HALLeffektmessungen nötigen Elektroden bei hoher gegenseitiger Isolation möglichst raumsparend angebracht werden, damit der Abstand der Magnetpole klein und damit das Magnetfeld gross gehalten werden kann. Ferner können nur solche Materialien verwendet werden, die sich gleichermassen für hohe und für tiefe Temperaturen eignen.

Aus diesen Gesichtspunkten heraus ergibt sich die Anordnung von Fig. 1: Die Platinschneide  $S_3$ , welche an Platindrähten durch die Bronzefedern  $F$  nach oben gezogen wird, drückt den Kristall gegen die in die zwei Quarzröhrchen  $Q$  eingekitteten HALLelektroden  $S_1$  und  $S_2$ . Während auf diese Weise die für die HALLe Spannungsmessung nötigen Elektroden zugleich als mechanische Halteelemente wirken, sind die Stromzuführungen  $C_1$  und  $C_2$  nur so leicht angefedert, dass der Kristall von ihnen nicht aus seiner Lage gebracht wird. Das Ganze wird von einer Kupferscheibe  $Cu$  getragen, welche die Befestigung am Ofen oder Gaskryostaten ermöglicht. Die Wasserleitung  $W$  hat bei Messung im Ofen den Zweck zu kühlen; bei Messungen unter  $273^\circ\text{K}$  wird dadurch die Reifbildung an den Isolationen verhindert.

Bei  $Th$  ist das Thermoelement zur Messung der Kristalltemperatur eingesteckt. Es besteht für Temperaturen über  $300^\circ\text{K}$  aus einem Pt-Pt/Rh-Paar, bei tiefen Temperaturen aus Kupfer und Konstantan.

2) Gaskryostat. Für die Messungen von Zimmertemperatur an abwärts wird ein Gyskryostat nach dem von BUSCH und GANZ<sup>1)</sup> beschriebenen Prinzip gebaut. Die hier getroffene Konstruktion, die aus Fig. 2 hervorgeht, gestattet jedoch die Untersuchungen zwischen den nahestehenden Polen eines Elektromagneten durch-

<sup>1)</sup> BUSCH und GANZ, H. P. A. **15**, 501 (1942).

zuführen. Da dabei Aussen- und Innenwand des Vakuummantelrohres *A* sehr verschiedene Temperaturen aufweisen, ist es nötig, ein Tombakstück in die äussere Wandung einzufügen. Dadurch wird vermieden, dass sich infolge der beim Abkühlen entstehenden Spannungen Risse im Glas bilden<sup>1)</sup>.

3) Ofen. Ein die Heizwicklung tragendes Quarzrohr von 20 cm Länge und 1,5 cm innerem Durchmesser ist in einem Abstand von

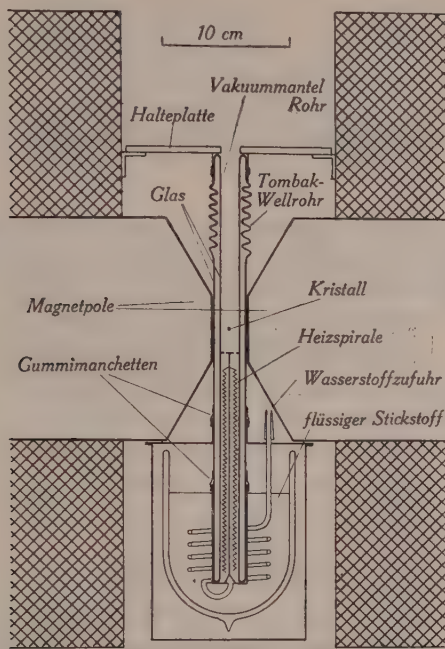


Fig. 2.  
Gaskryostat.

2 mm von einem wassergekühlten Kupfermantel umgeben, der die Erwärmung der Magnetpole verhindert. Weil auf diese Weise die Wärmeisolation sehr schlecht ist, braucht man für eine Temperatur von 1100°K eine Heizleistung von ca. 800 Watt. Dafür hat der Ofen den Vorteil einer relativ kurzen Einstellzeit für das einer Stromstärke entsprechende Temperaturgleichgewicht. Als Schutzgas wird gereinigter Stickstoff verwendet.

<sup>1)</sup> Das Vakuummantelrohr wurde von der Hochfrequenz-Abteilung der AG. Brown-Boveri, Baden, hergestellt, wofür auch an dieser Stelle bestens gedankt sei.

4) Elektrometerverstärker. Für die HALLeffektmessungen mit Gleichstrom wird mit einer Elektrometeröhre FP 54 eine Schaltung nach BARTH<sup>1)</sup> aufgebaut. Die Elektrometeröhre ist zum Schutz gegen Beeinflussung durch das Streufeld des Magneten mit einem 1,5 cm dicken Eisenpanzer abgeschirmt und ein Meter von den Polen entfernt aufgestellt. In dieser Anordnung verursacht das Einschalten des Magnetfeldes einen kaum messbaren Ausschlag des Anodenstrom-Galvanometers, der als kleine Korrektur bei den Messungen berücksichtigt wird.

Die Empfindlichkeit des Verstärkers beträgt bei einer Lichtzeigerlänge von ca. 6 Metern 2,5 mm für  $10^{-5}$  Volt. Die Ablesegenauigkeit beträgt 0,5 mm. Eine Spannung von  $2 \cdot 10^{-5}$  Volt kann demnach mit 10% Genauigkeit gemessen werden.

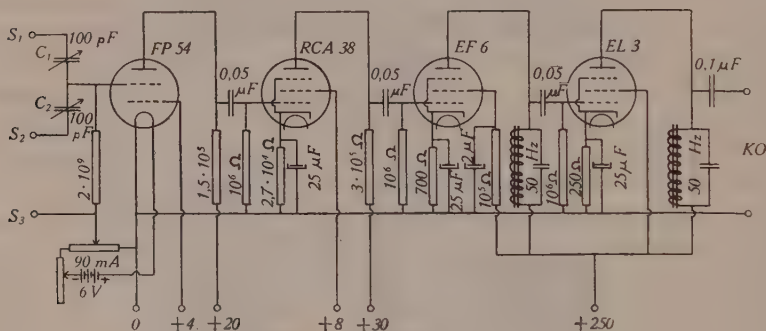


Fig. 3.

Wechselstromverstärker.

5) Wechselstromverstärker. Die HALLeffektmessungen mit Wechselstrom werden durchwegs mit 50 Hertz durchgeführt. Diese Frequenz erweist sich einerseits gerade als genügend gross, um die erwähnten ETTINGSHAUSEN-Störungen auszuschalten, andererseits darf sie zur Aufrechterhaltung einer hohen Eingangs-impedanz nicht wesentlich höher gewählt werden.

Bei der Kleinheit der auftretenden HALLspannungen muss das Rauschen des Verstärkers auf ein Mindestmass herabgesetzt werden. Das geschieht durch Abstimmen der zwei letzten Stufen auf die allein zu messende Frequenz von 50 Hertz. Das Frequenzband ist durch diese Massnahme auf ca. 10 Hertz eingeengt.

Aus diesen Anforderungen ergibt sich die in Fig. 3 dargestellte Schaltung. Als Eingangsöhre findet dieselbe Röhre FP 54 wie beim Gleichstromverstärker Verwendung, was das Einfügen des

<sup>1)</sup> BARTH, Zs. f. Phys. **87**, 399 (1934).

hohen Gitterableitwiderstandes von  $2 \cdot 10^9$  Ohm und die Ankopplung durch die kleinen Kapazitäten von 100 pF ermöglicht.

Diese mit  $C_1$  und  $C_2$  bezeichneten Drehkondensatoren sind mechanisch so gekoppelt, dass beim Grösserwerden des einen der andere im selben Mass kleiner wird. Dadurch wirken sie als kapazitives Potentiometer hoher Impedanz zwischen den HALLSonden  $S_1$  und  $S_2$ .

Die zweite Stufe dieses Verstärkers wird wie die erste von Batterien gespeisen. Sie arbeitet mit einer Röhre RCA 38, deren Anodenspannungsschwankungen auf das Gitter einer Pentode EF 6 gegeben werden. Diese Röhre sowie die Endröhre erhalten die Anodenspannung aus einem sehr sorgfältig geglätteten Netzanschlussgerät. Als Anodenwiderstände wirken die auf 50 Hertz abgestimmten LC-Glieder.

Die Ausgangswechselspannung wird von einem Kathodenstrahl-oszillographen nachgewiesen. Dieser erlaubt besser als ein gewöhnliches Voltmeter, die nicht ganz unterdrückbare Störspannung von der Messspannung zu trennen. Am Verstärkereingang wird die zu messende Spannung auf Null kompensiert. Der Verstärker wirkt somit als Nullinstrument.

Die kleinste noch nachweisbare Eingangsspannung beträgt ca.  $5 \cdot 10^{-7}$  Volt. Eine HALLspannung von  $5 \cdot 10^{-6}$  Volt kann somit mit einem mittleren Fehler von 10% gemessen werden.

6) Kristallstrom. Der für die Erzeugung des HALLeffektes notwendige Strom durch den Kristall wird im Falle der Gleichstrommessungen von einer 120 Volt-Akkumulatorenbatterie geliefert. Die Spannung ist so hoch gewählt, damit es möglich ist, durch Serieschaltung eines hohen Widerstandes Stromschwankungen, die durch Änderung der Übergangswiderstände zwischen Stromzuführung und Kristall entstehen könnten, zu unterdrücken.

Weil die Sonde  $S_3$  geerdet ist, müssen die Batterien samt Vorschaltwiderstand und Ampèremeter hochisoliert gegen Erde aufgestellt werden, damit die HALLspannung aufrechterhalten bleibt. Die grössten Kristallströme betragen bei den schwarzen Kristallen 6 mA, bei den grünen Kristallen 2 mA.

Im Falle der Wechselstrommessungen dient ein hochisolierter, kapazitätsarmer, abgeschirmter Transformator als Stromquelle. Die Sekundärspannung wird mit Hilfe eines Potentiometers auf der Primärseite zwischen 100 und 200 Volt gehalten. Durch statische Messung des Spannungsabfalls an den bekannten Vorschaltwiderständen im Kristallkreis kann man den Kristallstrom ermit-



teln. Dieser hat die gleiche Grössenordnung wie bei den Gleichstrommessungen.

7) Elektromagnet. Zur Herstellung des Magnetfeldes dient ein grosser Elektromagnet (Gewicht ca. 1000 kg). Die kegelförmigen Polstücke sind auf einer Basis 54 mm abgeplattet und müssen zur Aufnahme von Ofen- oder Gaskryostat einen Abstand von 26 mm haben.

Auf diese Weise erreicht das Magnetfeld einen Sättigungswert von ca. 16000 Amp/cm. Bei den Messungen wird mit einem konstanten Magnetstrom von 27 Amp gearbeitet, welcher einem Magnetfeld von 12800 Amp/cm entspricht. Der bei so grossen Feldern infolge der Hysterese entstehende Fehler nach dem Umpolen sowie die Remanenz nach dem Abschalten des Magneten sind bei unserer Messgenauigkeit zu vernachlässigen.

Die Messung der Feldstärke geschieht mit Probespule und ballistischem Galvanometer für verschiedene Stromstärken. Nach dieser Eichung wird der Polabstand nicht mehr verändert.

### III. Messergebnisse.

Mit der im vorhergehenden Abschnitt beschriebenen Apparatur wird an 12 SiC-Kristallen, an denen BUSCH<sup>1)</sup> die Temperaturabhängigkeit der Leitfähigkeit  $\sigma$  bestimmte, die HALLkonstante  $R$  im selben Temperaturbereich gemessen. Die grössten auftretenden HALLspannungen erreichen  $5 \cdot 10^{-4}$  Volt bei grünen,  $1,5 \cdot 10^{-4}$  Volt bei schwarzen Kristallen. In Fig. 4 und Fig. 5 sind je drei typische  $R$ -Kurven für grüne bzw. schwarze Kristalle aufgetragen.

Die Kurven weisen die folgenden wichtigen Merkmale auf:

1) Alle grünen Kristalle zeigen eine HALLkonstante, deren Vorzeichen einer Elektronenüberschussleitung entspricht. Alle schwarzen Kristalle geben dagegen HALLeffekt mit umgekehrtem Vorzeichen (Defektleitung).

2) Bei allen grünen Kristallen wächst die HALLkonstante im untersuchten Temperaturgebiet monoton mit wachsender reziproker Temperatur  $1/T$ .

3) Sämtliche schwarzen Kristalle zeigen in der Gegend von 200°K ein Maximum in der HALLkonstanten, welchem gegen grössere Werte von  $1/T$  hin ein steiler Abfall folgt. Bei weiter fallender Temperatur wird die HALLkonstante bis zu den tiefsten mit flüssigem Stickstoff erreichbaren Temperaturen unmessbar klein.

<sup>1)</sup> BUSCH, loc. cit.

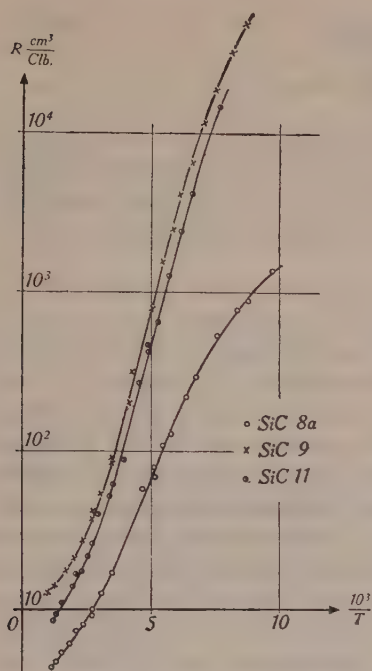


Fig. 4.

Temperaturabhängigkeit  
der HALLkonstanten des grünen  
Siliciumcarbids.

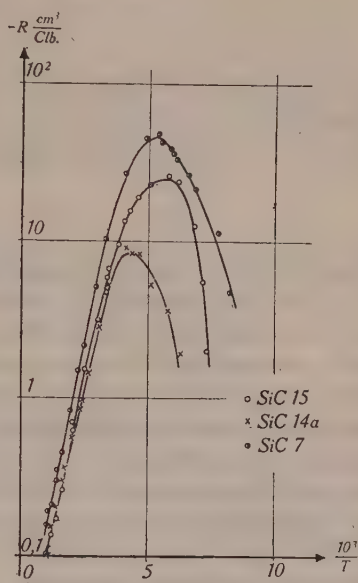


Fig. 5.

Temperaturabhängigkeit  
der HALLkonstanten des schwarzen  
Siliciumcarbids.

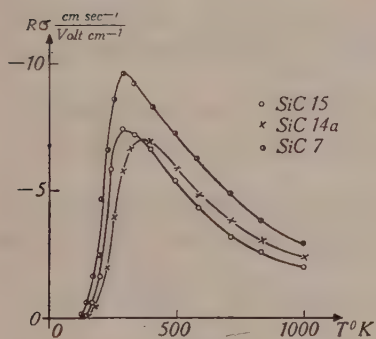


Fig. 6.

$R \cdot \sigma$  für grünes SiC.

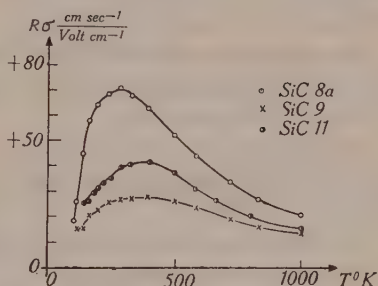


Fig. 7.

$R \cdot \sigma$  für schwarzes SiC.

Für die Diskussion der Messungen wird besonders die in den Fig. 6 und 7 gegebene Darstellung des Produktes aus  $R$  und  $\sigma$  in Funktion der Temperatur Bedeutung haben.

## IV. Diskussion.

I. Verlauf der  $R\sigma$ -Kurven.

1) Der Abfall gegen hohe Temperaturen. Solange die Leitfähigkeit nur durch die Elektronen eines einzigen Energiebandes bewirkt wird, bedeutet das Produkt  $R \cdot \sigma$  ihre Beweglichkeit  $v$ . Für  $v$  folgt aus der Elektronentheorie der Metalle

$$v = \frac{e}{m} \tau F. \quad (1)$$

Dabei bedeuten  $e$  und  $m$  Ladung und Ruhmasse des Elektrons.  $F$  ist die Freiheitszahl. Die Relaxationszeit  $\tau$  ist demnach die einzige temperaturabhängige Grösse in  $v$ .  $R\sigma$  liefert also in diesem Falle die gesuchte Temperaturabhängigkeit von  $\tau$ . Bei Temperaturen über  $400^\circ$  ist die am Anfang dieses Abschnittes gestellte Bedingung hinreichend erfüllt. Die  $R\sigma$ -Kurven zeigen in diesem Bereich einen Abfall, der, wie es die Theorie verlangt, nicht wesentlich verschieden ist vom Verlauf der Funktion  $T^{-3/2}$ . Somit ist die Möglichkeit ausgeschlossen, dass die Maxima in den  $\sigma$ -Kurven infolge einer andern Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit  $\tau$  nach tieferen Temperaturen verschoben sind. *Es kann demnach geschlossen werden, dass die Zahl  $n$  der Leitungselektronen einen von der Wilsonschen Theorie verschiedenen Temperaturgang aufweisen muss.*

2) Verlauf bei tiefen Temperaturen. Im Gegensatz zum Verhalten bei hohen Temperaturen wächst für  $T < 400^\circ\text{K}$  die Grösse  $R\sigma$  mit steigender Temperatur. Diese Erscheinung soll im Folgenden untersucht werden.

Der Knick in den  $\sigma$ -Kurven macht es sehr wahrscheinlich, dass zwei Störstellenniveaux verschiedener Energie am Leitungsmechanismus beteiligt sind.

Auf Grund der  $R\sigma$ -Kurven können aber weitere Aussagen über die Art und gegenseitige Lage dieses Energieniveaus im Kristall gemacht werden.

Vorerst kann entschieden werden, welcher der beiden folgenden Fälle beim SiC vorliegt:

1. Es kommen nur in einem Band freie Elektronen bzw. Löcher vor, deren Zahl gleich der Summe der aus zwei verschiedenen Niveaux gespendeten Elektronen bzw. Löcher ist.

2. Der Elektrizitätstransport geschieht durch gleichzeitige Wanderung von freien Elektronen bzw. Löchern in zwei verschiedenen Energiebändern.

Da im ersten Fall alle Elektronen (Löcher) ungeachtet des Störstellenniveaus, aus dem sie stammen, gleiche Freiheitszahl und Relaxationszeit haben, muss ihre Beweglichkeit im ganzen Temperaturbereich, speziell also auch bei tiefen Temperaturen, proportional  $T^{-3/2}$  sein. Die aus den Messungen erhaltenen  $R\sigma$ -Kurven zeigen aber, dass dieser Fall beim SiC sicher nicht realisiert ist. Wie unter Annahme der zweiten Möglichkeit der Verlauf der  $R\sigma$ -Kurven erklärt werden kann, zeigt das Folgende.

3) Formeln für den Fall zweier Leitungsniveaux. Aus der wellenmechanischen Elektronentheorie der Metalle<sup>1)</sup> folgt für die elektrische Leitfähigkeit  $\sigma$  im Fall zweier beteiligter Niveaux

$$\sigma = \frac{e^2}{m} (\tau_1 |F_1| n_1 + \tau_2 |F_2| n_2) = \sigma_1 + \sigma_2 \quad (2)$$

$n_1$  und  $n_2$  bedeuten die Zahlen der in den beiden Leitungsbändern enthaltenen Elektronen bzw. Löcher.  $\tau_1$  und  $\tau_2$  sind die entsprechenden Relaxationszeiten,  $F_1$  und  $F_2$  die Freiheitszahlen.  $\sigma_1$  und  $\sigma_2$  bedeuten die Einzelbeiträge der beiden Leitungsbänder zu  $\sigma$ .

Mit denselben Bezeichnungen schreibt sich die HALLkonstante  $R$  in diesem Fall

$$R = \frac{3\pi}{8e} \frac{\pm \tau_1^2 F_1^2 n_1 \pm \tau_2^2 F_2^2 n_2}{(\tau_1 |F_1| n_1 + \tau_2 |F_2| n_2)^2} \quad (3)$$

und somit

$$R\sigma = \frac{3\pi e}{8m} \frac{\pm \tau_1^2 F_1^2 n_1 \pm \tau_2^2 F_2^2 n_2}{\tau_1 |F_1| n_1 + \tau_2 |F_2| n_2}. \quad (4)$$

Das positive Vorzeichen ist jeweils für positive, das negative für negative Freiheitszahl zu wählen.

Setzt man noch, wie experimentell bestätigt ist,

$$\tau_1 = \tau_{10} T^{-3/2}; \quad \tau_2 = \tau_{20} T^{-3/2} \quad (5)$$

wobei  $\tau_{10}$  und  $\tau_{20}$  konstant sind, so wird der Temperaturverlauf des Ausdruckes  $R\sigma T^{3/2}$  nur noch von den Elektronenzahlen  $n_1$  und  $n_2$  abhängig, d. h.

$$R\sigma T^{3/2} = \frac{3\pi e}{8m} \frac{\pm \tau_{10}^2 F_1^2 n_1 \pm \tau_{20}^2 F_2^2 n_2}{\tau_{10} |F_1| n_1 + \tau_{20} |F_2| n_2}. \quad (6)$$

4) Berechnung von  $n_1$  und  $n_2$ . Für die Berechnung der Elektronenzahlen  $n_1$  und  $n_2$  werde das in Fig. 9a dargestellte, möglichst allgemein gehaltene Niveauschema zugrunde gelegt.

<sup>1)</sup> Siehe z. B. FRÖHLICH, Elektronentheorie der Metalle S. 237 (1936).



Wenn man beachtet, dass die Gesamtheit der Elektronen durch ein und dieselbe FERMI-Verteilungsfunktion

$$f = \frac{1}{e^{\frac{E-\zeta}{kT}} + 1}$$

beschrieben wird, so kann man die Bilanzen für Löcher und Elektronen wie folgt schreiben:

$$\left. \begin{aligned} 2 \int_{-\infty}^{E_1} (1-f(E)) D(E) dE &= Z + n_A f(E_3) \\ \text{Zahl der Löcher} & \quad \text{Zahl der Elektronen} \\ \text{im vollen Band} & \quad \text{im Rezeptorenniveau} \\ 2 \int_{E_1}^{\infty} f(E) D(E) dE &= Z + n_D (1-f(E_2)) \\ \text{Zahl der Elektronen} & \quad \text{Zahl der Löcher} \\ \text{im leeren Band} & \quad \text{im Donatorenniveau} \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

$D(E)$  bedeutet die Eigenwertdichte.  $Z$  ist die Zahl der Elektronen, die bei der betrachteten Temperatur aus dem höchsten vollbesetzten in das leere Band übergegangen sind. Das oberste und unterste Band im Schema der Fig. 9a haben im allgemeinen genügenden Abstand von der Grenzenergie  $\zeta$  der FERMI-Verteilung, um mit einer MAXWELLSchen Verteilungsfunktion behandelt werden zu können. Dagegen ist diese Vereinfachung nicht ohne weiteres für die Störniveaux zulässig, da sie der Grenzenergie unter Umständen sehr benachbart sein können. Setzt man nach FRÖHLICH für  $D(E)$

$$D(E) = \frac{1}{4\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2 F} \right)^{3/2} (E - E_{\text{Rand}})^{1/2} \quad (7a)$$

und eliminiert aus unsern Ausdrücken (7)  $Z$ , so folgt eine Bestimmungsgleichung für  $\zeta$  von der Form:

$$\frac{n_A}{e^{\frac{E_3-\zeta}{kT}} + 1} - \frac{n_D}{e^{\frac{E_2-\zeta}{kT}} + 1} = \alpha_u e^{\frac{E_1-\zeta}{kT}} - \alpha_0 e^{\frac{\zeta-E_4}{kT}} \quad (8)$$

wo

$$\alpha_u = \left( \frac{m k T}{2 \pi \hbar^2 |F_u|} \right)^{3/2}; \quad \alpha_0 = \left( \frac{m k T}{2 \pi \hbar^2 F_0} \right)^{3/2} \quad (9)$$

$F_u$  und  $F_0$  sind die Freiheitszahlen im unteren bzw. oberen Band.

Da die Lösung der Gleichung (8) auf eine Gleichung vierten Grades in  $e^{\frac{\zeta}{kT}}$  führt, so ist es nicht möglich, die Lage und den Temperaturgang von  $\zeta$  übersichtlich zu diskutieren.

Wir beschränken uns daher auf die Feststellung, dass es zum vornherein nicht selbstverständlich ist, dass im Falle mehrerer Niveaux die Elektronenzahlen  $n_1$  und  $n_2$  sich als einfache  $e$ -Funktionen darstellen lassen, wie das in der Theorie von WILSON für ein einziges Leitungsband möglich ist.

Ferner muss darauf hingewiesen werden, dass die aus dem Experiment bestimmten scheinbaren Aktivierungsenergien  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  durchaus nicht in einem einfachen Zusammenhang mit der Energiedifferenz zweier Niveaux zu stehen brauchen.

5) Bestimmung von  $n_1$  und  $n_2$  aus  $\sigma$ . Infolge der Unmöglichkeit der geschlossenen Durchführung der Rechnung scheint es aussichtsreicher, die Ausdrücke für  $n_1$  und  $n_2$  direkt den  $\sigma$ -Kurven zu entnehmen.

Wir treffen dabei die Annahme, dass sich die Leitfähigkeit bei hinreichend tiefen Temperaturen ( $T < 600^\circ \text{K}$ ) darstellen lasse in der Form:

$$\sigma = a_1 T^{-3/4} e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}} + a_2 T^{-3/4} e^{-\frac{\varepsilon_2}{2kT}}. \quad (10)$$

Die Faktoren  $T^{-3/4}$  sind entsprechend der WILSONschen Theorie der Halbleiter eingeführt. Durch Auftragen von  $\log \sigma T^{3/4}$  in Funktion von  $1/T$  lassen sich sofort aus den Steilheiten der beiden Kurvenäste  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  bestimmen. Durch Extrapolation nach  $1/T = 0$  erhält man  $a_1$  und  $a_2$ . Unter Berücksichtigung von (5) sieht man durch Vergleich mit Formel (2) sofort, dass für  $n_1$  und  $n_2$  zu setzen ist:

$$n_1 = \frac{a_1 m}{e^2 \tau_{10} |F_1|} T^{3/4} e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}}; \quad n_2 = \frac{a_2 m}{e^2 \tau_{20} |F_2|} T^{3/4} e^{-\frac{\varepsilon_2}{2kT}}. \quad (11)$$

6) Anpassung von  $R\sigma T^{3/2}$  an die Messungen. Durch Einsetzen von (11) in (6) folgt

$$R\sigma T^{3/2} = \frac{a_1' e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}} + a_2' e^{-\frac{\varepsilon_2}{2kT}}}{a_1 e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}} + a_2 e^{-\frac{\varepsilon_2}{2kT}}} \quad (12)$$

wobei

$$a_1' = a_1 \frac{3\pi e}{8m} \tau_{10} F_1 \quad a_2' = a_2 \frac{3\pi e}{8m} \tau_{20} F_2. \quad (13)$$

Die aus den Experimenten hergeleiteten  $R\sigma T^{3/2}$ -Kurven müssen sich demnach durch Ausdrücke von der Form (12) darstellen lassen.

Zur Anpassung an die Messungen, d. h. zur Bestimmung der Koeffizienten  $a_1 a_1' a_2 a_2'$ , zerlegen wir (12) wie folgt:

$$R\sigma T^{3/2} = \frac{\frac{a_1'}{a_1}}{1 + \frac{a_2}{a_1} e^{-\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2kT}}} + \frac{\frac{a_2'}{a_2}}{1 + \frac{a_1}{a_2} e^{-\frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2kT}}} \quad (14)$$

Wählt man als unabhängige Variable  $x = \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_2}{2kT}$  und führt die Funktionen

$$g_1(y) = \frac{1}{1 + e^y} \quad g_2(y) = \frac{1}{1 + e^{-y}}$$

ein, so geht damit (14) über in

$$R\sigma T^{3/2} = \frac{a_1'}{a_1} g_1\left(x - \ln \frac{a_1}{a_2}\right) + \frac{a_2'}{a_2} g_2\left(x - \ln \frac{a_1}{a_2}\right). \quad (14a)$$

Die Analyse der  $R\sigma T^{3/2}$ -Kurven an Hand von Gleichung (14a) erfolgt in der folgenden Weise:

1. Auftragen von  $\log \sigma T^{3/4}$  in Funktion von  $1/T$  und Bestimmung von  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  zur Berechnung von  $x$ .
2. Auftragen von  $\log R\sigma T^{3/2}$  in Funktion von  $x$ .
3. Auftragen von  $\log g_1$  und  $\log g_2$  in Funktion von  $y$  im selben Masstab auf Transparentpapiere.
4. Auflegen von  $g_1$  auf  $R\sigma T^{3/2}$ , so dass sich die Kurven bei hohen Temperaturen möglichst gut decken.
5. Eine Abweichung der Messkurve von  $g_1$  bei tiefen Temperaturen muss durch Addition oder Subtraktion von  $g_2$  in passender Stellung dargestellt werden können.
6. Aus der endgültigen Stellung der Achsen  $\log g_1 = 0$  und  $\log g_2 = 0$  können  $\frac{a_1'}{a_1}$  und  $\frac{a_2'}{a_2}$  abgelesen werden. Die Stellung der  $g_1$  und  $g_2$  gemeinsamen Achse  $y = 0$  liefert  $\ln \frac{a_1}{a_2}$ .

Die Fig. 8 zeigt je ein Beispiel für eine solche Anpassung bei einem grünen und einem schwarzen Kristall.

Bei allen untersuchten Kristallen findet man, dass innerhalb der Messfehler  $R\sigma T^{3/2}$  durch den ersten Summanden von (14) allein dargestellt wird, d. h. dass  $\frac{a_2'}{a_2}$  mindestens um einen Faktor 1000 kleiner als  $\frac{a_1'}{a_1}$  sein muss.

Da aber  $\frac{a_1'}{a_1} : \frac{a_2'}{a_2} = \frac{\tau_{10} F_1}{\tau_{20} F_2}$  ist, so bedeutet dies, dass die Freiheitszahl  $F_2$  in dem bei tiefen Temperaturen wirksamen Niveau

um mindestens einen Faktor 1000 kleiner sein muss als in dem bei hohen Temperaturen massgebenden Leitungsband. Ein Grund,  $\tau_{10}$  und  $\tau_{20}$  grössenordnungsmässig verschieden anzunehmen, besteht dagegen nicht.

Zu dem durch diese Anpassung bestimmten Verhältnis  $a_1/a_2$  ist zu bemerken, dass es sich durchwegs um einen Faktor 10–20 kleiner ergibt als der aus den  $\sigma T^{3/4}$ -Kurven bestimmte Wert. Dies kann teils von einer durch den Ansatz (10) nicht erfassten, relativ starken Temperaturabhängigkeit der Grenzenergie  $\zeta$  herühren, teils eine Folge der Anisotropie des HALL-effektes und der Leitfähigkeit in den hexagonalen Kristallen des SiC sein.

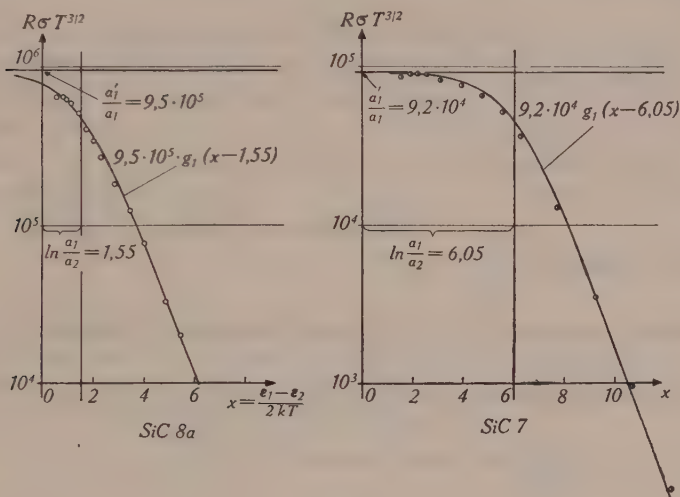
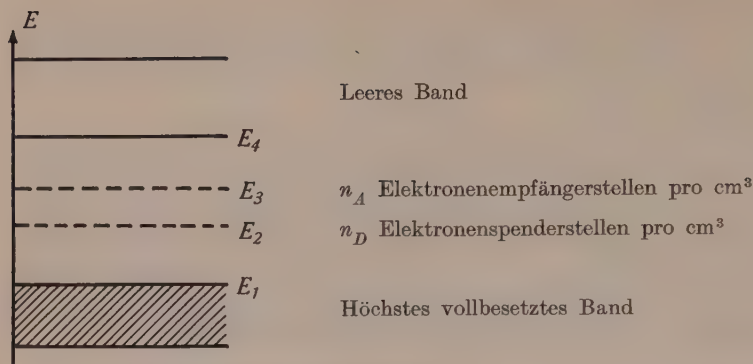


Fig. 8.

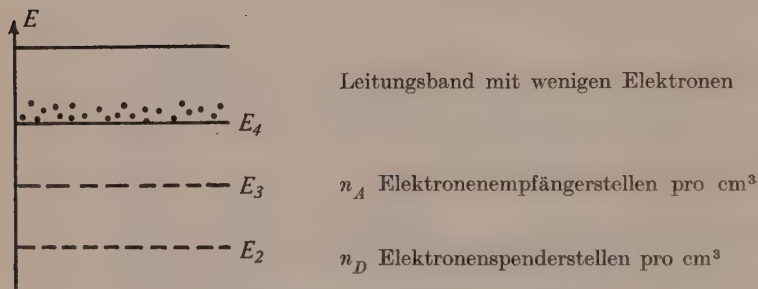
7) Modell. Es erhebt sich nun die Frage nach einem Modell im Sinne der WILSONschen Theorie, durch welches die gefundenen Verhältnisse erklärt werden können.

Infolge der grossen Verschiedenheit der Freiheitszahlen in den beiden Niveaux scheint es nicht möglich, dass der Fall gleichzeitiger Elektronenleitung in einem fast leeren Band und Löcherleitung in einem fast vollbesetzten Leitungsband vorliegt. Zwanglos ergeben sich aber die Verhältnisse aus einem Modell nach Fig. 9b für die grünen, nach Fig. 9c für die schwarzen Kristalle. Dabei wird je einem Störniveau Leitvermögen zugeschrieben. Die geforderte sehr kleine Freiheitszahl und die (wie später gezeigt wird) relativ grosse Zahl der Störstellen  $n_A$  bzw.  $n_D$  rechtfertigen diese Annahme durchaus.

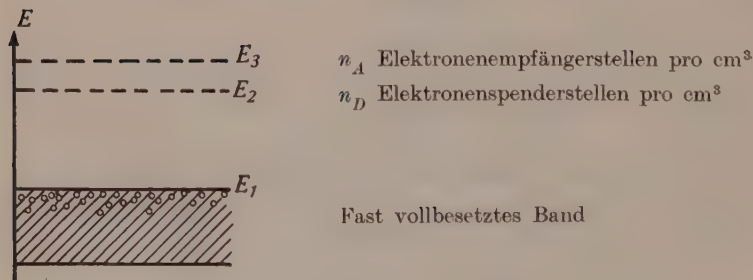




a) Allgemeines Niveauschema



b) Niveauschema für grüne SiC-Kristalle.



c) Niveauschema für schwarze SiC-Kristalle.

Fig. 9.

8) Näherungsweise Berechnung der Modelleigenschaften. Es soll nun gezeigt werden, dass ein Modell, wie es in Fig. 9b oder 9c angenommen ist, wirklich die experimentell gefundenen Eigenschaften erklären kann. Besonders soll gezeigt werden, dass sowohl im Leitungsband wie auch in den leitenden Störstellen-niveaux die Zahl der Elektronen im wesentlichen durch Funktionen der Form  $e^{-\frac{\epsilon}{2kT}}$  dargestellt werden kann.

Im Falle des grünen SiC besagt die Gleichung

$$(1 - f(E_2)) n_D = f(E_3) n_A + 2 \int_{E_1}^{\infty} f(E) D(E) dE, \quad (15)$$

dass die aus den  $n_D$  Spenderstellen emittierten Elektronen sich im Rezeptorenniveau und im Leitungsband wieder finden. Die Näherung der Rechnung besteht nun darin, an Stelle der strengen FERMI-Verteilung  $f(E)$  eine MAXWELLSche Verteilung in (15) einzusetzen. Die so erhaltene Gleichung ist algebraisch geschlossen lösbar und hat die Form

$$n_D e^{\frac{E_2 - \zeta}{kT}} = n_A e^{-\frac{E_3 - \zeta}{kT}} + \alpha_0 e^{\frac{\zeta - E_1}{kT}} \quad (16)$$

Dabei ist  $\alpha_0$  aus (9) zu entnehmen. Bestimmt man aus (16)  $e^{\frac{\zeta}{kT}}$  und geht damit in die beiden Summanden der rechten Seite ein, so erhält man für die Zahl  $n_1$  der Elektronen im Leitungsband und für die Zahl  $n_2$  der Elektronen im Störband

$$n_1 = \left( \frac{n_D \alpha_0 e^{\frac{E_2 - E_1}{kT}}}{1 + \frac{n_A}{\alpha_0} e^{\frac{E_1 - E_3}{kT}}} \right)^{1/2}; \quad n_2 = \left( \frac{\frac{n_D}{\alpha_0} n_A^2 e^{-\frac{2E_3 - (E_2 + E_1)}{kT}}}{1 + \frac{n_A}{\alpha_0} e^{\frac{E_1 - E_3}{kT}}} \right)^{1/2}. \quad (17)$$

Die Zahl der Löcher im Störstellenband der Energie  $E_2$ , die auch Leitfähigkeit bewirken können, ist  $n_3 = n_1 + n_2$ . Für die Leitfähigkeit darf man jedoch  $n_3 \approx n_2$  setzen, da die  $n_1$  Leitungselektronen im Leitungsband mit grosser Freiheitszahl einen weit grösseren Beitrag liefern als die  $n_1$ -Löcher im Störstellenband mit kleiner Freiheitszahl. Wir finden somit im Grenzfalle

$$1 \ll \frac{n_A}{\alpha_0} e^{\frac{E_1 - E_3}{kT}} \\ n_1 = \left( \frac{n_D}{n_A} \right)^{1/2} \alpha_0 e^{-\frac{2E_1 - (E_2 + E_3)}{2kT}}; \quad n_3 \approx n_2 = (n_D n_A)^{1/2} e^{-\frac{E_3 - E_1}{2kT}} \quad (17a)$$

und im Grenzfall

$$1 \gg \frac{n_A}{\alpha_0} e^{\frac{E_4 - E_3}{kT}}$$

$$n_1 = (\alpha_0 n_D)^{1/2} e^{\frac{E_2 - E_4}{2kT}}; n_3 \approx n_2 = \left(\frac{n_D}{\alpha_0}\right)^{1/2} n_A e^{\frac{-2E_2 + (E_2 + E_4)}{2kT}}. \quad (17b)$$

Um zu entscheiden, welcher Fall bei SiC vorliegt, gehen wir mit den Ausdrücken (17a) bzw. (17b) in (6) ein und erhalten durch Vergleich mit (12) die Beziehung

$$\frac{n_A}{\alpha_0} = \frac{a_1'}{a_1} \cdot \frac{a_2}{a_2'} \cdot \frac{a_2}{a_1}. \quad (18)$$

Durch Einsetzen der experimentell für  $\frac{a_1'}{a_1}$ ,  $\frac{a_2'}{a_2}$  und  $\frac{a_2}{a_1}$  gefundenen Werte überzeugt man sich, dass für nicht zu hohe Temperaturen der Grenzfall (17a) vorliegt.

Damit ist gezeigt, dass  $n_1$  und  $n_2$  näherungsweise wie  $e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}}$  bzw. mit  $e^{-\frac{\varepsilon_2}{2kT}}$  von der Temperatur abhängen. Zugleich ist der Zusammenhang zwischen  $\varepsilon_1$  und  $\varepsilon_2$  und den Energiewerten des Niveauschemas hergestellt. Es ist

$$\varepsilon_1 = 2E_4 - (E_2 + E_3); \quad \varepsilon_2 = E_3 - E_2 \quad (19)$$

Für SiC 8a ist gemessen  $\varepsilon_1 = 0,2$  eV,  $\varepsilon_2 = 0,1$  eV. Setzt man  $E_2 = 0$ , so folgt für  $E_3 = 0,2$  eV, für  $E_4 = 0,3$  eV.

Für die schwarzen Kristalle (Schema Fig. 9c) ergibt die analoge Rechnung dieselben Ausdrücke. Man darf daher die obigen Resultate auch auf die schwarzen Kristalle übertragen.

So ergibt sich für SiC 7 mit  $\varepsilon_1 = 0,31$  eV und  $\varepsilon_2 = 0,054$  eV, wenn  $E_1 = 0$  ist,  $E_2 = 0,13$ ,  $E_3 = 0,18$  eV.

Welchem der beiden Störniveaux Leitvermögen zugeschrieben werden muss, geht aus unseren Experimenten nicht hervor.

## II. Erklärung der Maxima in den $\sigma$ -Kurven.

Es wurde oben dargetan, dass die Verschiebung der Maxima in den  $\sigma$ -Kurven nach tieferen Temperaturen, als nach der WILSON-theorie der Halbleiter zu erwarten ist, ihren Grund darin hat, dass diese den Temperaturgang der Zahl  $n_1$  der Leitungselektronen nicht in allen Fällen richtig wiedergibt.

In diesem Abschnitt soll der Gültigkeitsbereich der WILSON-theorie untersucht und erweitert werden.

1) Experimentell ermittelte Zahl der Leitungselektronen pro  $\text{cm}^3$ . Bei hohen Temperaturen überwiegt der Einfluss des einen Leitungsbandes so stark, dass die Zahl der Leitungselektronen aus dem einfachen Ausdruck

$$R = \frac{3\pi}{8e} \cdot \frac{1}{n_1} \quad (20)$$

berechnet werden kann.

Wie aus Fig. 4 und Fig. 5 zu entnehmen ist, haben bei hohen Temperaturen die grünen Kristalle HALLkonstanten von ungefähr  $10 \text{ cm}^3/\text{Clb}$ , die schwarzen Kristalle solche von  $0,2 \text{ cm}^3/\text{Clb}$ . Mit Gleichung (20) ergibt sich daraus für die grünen Kristalle  $n_1 \approx 10^{18}$  Elektronen/ $\text{cm}^3$ , für die schwarzen Kristalle  $n_1 \approx 4 \cdot 10^{19}$  Elektronen/ $\text{cm}^3$ .

Diese Elektronenkonzentrationen sind schon so hoch, dass mit der Möglichkeit *beginnender Entartung* des Elektronengases gerechnet werden muss.

Entartung tritt dann ein, wenn die Elektronendichte von der Grössenordnung von

$$n_{\text{krit}} = \left( \frac{2 m^* kT}{h^2} \right)^{3/2} \quad \text{wo } m^* = \frac{m}{F}$$

wird. Bei Temperaturen von  $1000^\circ\text{K}$  und einer Freiheitszahl  $F = 1$  ist  $n_{\text{krit}} = 1,3 \cdot 10^{19}$  Elektronen/ $\text{cm}^3$ , also gerade von der Grössenordnung der experimentell gefundenen Elektronendichten.

Bei der Berechnung von  $n_1$  in der WILSONtheorie der Halbleiter wird die FERMIFunktion durch eine MAXWELLverteilung ersetzt. Das bedeutet aber Vernachlässigung jeder Entartungserscheinung. Es ist daher zu vermuten, dass die erwähnte Diskrepanz durch eine Berechnung von  $n_1$  unter Berücksichtigung der beginnenden Entartung geklärt werden kann.

2) Berechnung von  $n_1$  bei beginnender Entartung. Im Falle des grünen SiC müsste zur strengen Berechnung von  $n_1$  die Gleichung (15) unter Verwendung der FERMIVerteilungsfunktion

für  $f$  nach  $\zeta$  gelöst werden. Einsetzen von  $\zeta$  im Integral  $2 \int_{E_i}^{\infty} f D dE$

ergäbe dann das gesuchte  $n_1$ .

Diese Rechnung ist aber nicht geschlossen durchführbar, da sie auch unter Verwendung einer im Folgenden abgeleiteten Näherung für das Integral der rechten Seite von (15) auf eine Gleichung dritten Grades in  $e^{\frac{\zeta}{kT}}$  mit sehr unübersichtlichen Koeffizienten führt.



Um eine diskutierbare Lösung des Problems zu erhalten, werden die beiden Störstellenniveaux der Fig. 9b durch ein einziges Elektronenspenderniveau der Energie  $E_2'$  und der Störstellendichte  $n_D'$  ersetzt.

Dieser Ersatz ist dadurch gerechtfertigt, dass sich  $\sigma$  oberhalb des Knicks wirklich so verhält, wie wenn nur ein Störstellenniveau vorhanden wäre.

Im Fall 17b, der bei hohen Temperaturen bei einigen schwarzen Kristallen realisiert sein könnte, spielt  $n_A$  in der Formel für  $n_1$  keine Rolle. Es ist in diesem Fall

$$E_2' = E_2 \quad n_D' = n_D.$$

Im Fall 17a, der bei der Mehrzahl der Kristalle auch bei hohen Temperaturen vorliegt, ergibt sich durch Vergleich der nach WILSON aus unserem Ersatzmodell abgeleiteten Formel

$$n_1 = (\alpha_0 n_D')^{1/2} e^{-\frac{E_4 - E_2'}{2kT}}$$

mit dem dort erhaltenen

$$n_1 = \alpha_0 \left( \frac{n_D}{n_A} \right)^{1/2} e^{-\frac{2E_4 - (E_2 + E_3)}{2kT}}$$

dass gesetzt werden muss:

$$\begin{aligned} E_2' &= E_3 + E_2 - E_4 \\ n_D' &= \alpha_0 \frac{n_D}{n_A}. \end{aligned} \quad (20a)$$

Da der Berechnung dieser Ausdrücke MAXWELLverteilung zugrunde liegt, sind sie nur als rohe Abschätzungen zu bewerten.

Die für das Ersatzmodell zu lösende Gleichung lautet

$$(1 - f(E_2')) n_D' = 2 \int_0^\infty f(E) D(E) dE. \quad (21)$$

Setzt man für  $f$  die FERMIFunktion ein und verwendet für  $D(E)$  den Ausdruck (7a), so geht (21) über in

$$\frac{n_D'}{\epsilon \frac{E_2' - \xi}{kT} + 1} = \frac{1}{2\pi^2} \left( \frac{2m}{\hbar^2 F_0} \right)^{3/2} \cdot \int_{E_1}^\infty \frac{(E - E_4)^{1/2} dE}{e^{\frac{E - \xi}{kT}} + 1}. \quad (22)$$

Mit den Substitutionen

$$x = \frac{E - E_4}{kT} \quad \mu = \frac{\xi - E_4}{kT} \quad \epsilon_0 = \frac{E_4 - E_2'}{kT} = \frac{\epsilon_1}{kT}$$

folgt hieraus

$$\frac{A^*}{e^{\epsilon_0 + \mu} + 1} = \frac{1}{2} \int_0^\infty \frac{x^{1/2} dx}{e^{x - \mu} + 1} = f_{1/2}(\mu) \quad (23)$$

wo

$$A^* = \pi^2 n_D' \left( \frac{\hbar^2}{2 m^* k T} \right)^{3/2}.$$

Diese Gleichung ist identisch mit einem von SHIFRIN<sup>1)</sup> gegebenen Ausdruck. Um  $\mu$  und damit auch  $\zeta$  zu bestimmen, wurde von SHIFRIN eine graphische Methode angegeben. Diese hat den Vorteil, für jeden beliebigen Entartungsgrad gültig zu sein, gestattet jedoch keine übersichtliche Diskussion der vorliegenden Verhältnisse. SHIFRIN hat gezeigt, dass  $\mu$  als Mass für die Entartung des Elektronengases betrachtet werden kann. Wenn  $\mu \leq -2$  ist, d. h. solange die Grenzenergie  $\zeta$  um mehr als  $2 k T$  unter dem unteren Rand des Leitungsbandes liegt, darf das Elektronengas als nicht entartet betrachtet werden. Für  $\mu \geq +1$  dagegen, wo  $\zeta$  mit einem Abstand  $\leq k T$  oberhalb des unteren Randes des Leitungsbandes liegt, darf schon mit völliger Entartung gerechnet werden.

Im Folgenden soll eine analytische Methode gegeben werden, durch welche die Gleichung (23) für alle Werte  $\mu \leq +1,5$  gelöst wird. Sie ermöglicht, das ganze Übergangsgebiet zwischen völlig unentartetem und völlig entartetem Zustand zu beherrschen und eine in diesem Gebiet gültige geschlossene Formel für  $\sigma$  aufzustellen.

#### $\alpha)$ Berechnung des Integrals $f_{1/2}(\mu)$ .

Die Funktion  $f_{1/2}(\mu)$  ist durch die folgende Integraldarstellung gegeben:

$$f_{1/2}(\mu) = \frac{1}{2} \int_0^\infty \frac{x^{1/2} dx}{e^{x - \mu} + 1}.$$

Durch Entwicklung des Integranden nach Potenzen von  $e^{\mu - x}$  und gliedweise Integration erhält man die von SHIFRIN gegebene, für  $\mu < 0$  gültige Reihenentwicklung

$$f_{1/2}(\mu) = \frac{\pi^{1/2}}{4} e^\mu \sum_{n=0}^\infty (-1)^n \frac{e^{n\mu}}{(n+1)^{3/2}}. \quad (24)$$

Es ist möglich, aus dieser Reihe einen Ausdruck abzuleiten, der den in der Arbeit von SHIFRIN im Intervall  $-6 \leq \mu \leq +6$  tabellierten Verlauf von  $f_{1/2}(\mu)$  für alle  $\mu \leq +1,5$  sehr gut wiedergibt.

<sup>1)</sup> SHIFRIN, Journal of Physics of USSR, Vol. VIII, 242 (1944).

Wir setzen zu diesem Zweck

$$f_{1/2}(\mu) = \frac{\pi^{1/2}}{4} e^{\mu} \frac{1}{G(\eta)} \quad \text{mit} \quad \eta = e^{\mu}$$

$G(\eta)$  wird somit

$$G(\eta) = \frac{1}{\sum_0^{\infty} (-1)^n \frac{\eta^n}{(n+1)^{3/2}}}.$$

Die TAYLOREntwicklung in der Umgebung von  $\eta = 0$  liefert hierfür

$$G(\eta) = 1 + 0,3535 \eta - 0,06745 \eta^2 + \dots$$

Damit wird:

$$f_{1/2}^I(\mu) = \frac{\pi^{1/2}}{4} \frac{e^{\mu}}{1 + 0,3535 e^{\mu} - 0,06745 e^{2\mu}}. \quad (25)$$

Wie aus Tabelle 1 ersichtlich ist, gibt  $f_{1/2}^I(\mu)$  schon bei  $\mu = +1$  eine Abweichung von 20% vom richtigen Wert. Man kann aber die Näherung verbessern, indem man setzt

$$f_{1/2}^{II}(\mu) = \frac{\pi^{1/2}}{4} \frac{e^{\mu}}{1 + b e^{\mu} + c e^{2\mu}}. \quad (25a)$$

Durch Anschluss an das exakte  $f_{1/2}(\mu)$  in den Punkten  $\mu = 0$  und  $\mu = +1,5$  bestimmen sich  $b = 0,369483$ ;  $c = -0,027967$ .

Aus Tabelle 1 geht hervor, dass das mit diesen Koeffizienten berechnete  $f_{1/2}^{II}(\mu)$  für  $\mu \leq +1,5$  mit einem Maximalfehler von 3,5% die exakte Funktion  $f_{1/2}(\mu)$  wiedergibt.

Tabelle 1.

$\mu$	$f_{1/2}(\mu)^1$	$f_{1/2}^I(\mu)$	$f_{1/2}^{II}(\mu)$	$f_{1/2}^{III}(\mu)$
-6	0,0011	0,0011	0,0011	
-3	0,0216	0,0217	0,0217	
-2,5	0,0352	0,0353	0,0353	
-2,0	0,0564	0,0573	0,0571	
-1,5	0,0917	0,0919	0,0914	
-1,0	0,1448	0,1454	0,1440	
-0,5	0,2245	0,2259	0,2214	
0	0,3303	0,3445	0,3303	$\infty$
0,5	0,4955	0,5220	0,4769	0,699
1	0,6865	0,8235	0,6700	0,744
1,5	0,9484	1,6152	0,9484	0,948
2	1,2498		1,4861	1,233
2,5	1,5776			1,580
3	2,0125			1,970
6	5,1215			5,068

<sup>1)</sup> nach SHIFRIN.

In Tabelle 1 findet man für  $\mu \geq 0,5$  auch die aus der SOMMERFELDtheorie nach der Formel

$$f_{1/2}^{\text{III}}(\mu) = \frac{\mu^{3/2}}{3} \left( 1 + \frac{\pi^2}{8} \mu^{-2} \right)$$

berechneten Werte  $f_{1/2}^{\text{III}}(\mu)$  eingetragen. Man sieht, dass gerade dort, wo  $f_{1/2}^{\text{II}}(\mu)$  merkliche Fehler gibt, die Näherung durch  $f_{1/2}^{\text{III}}(\mu)$  gut wird. Anschaulich werden die Näherungsverhältnisse durch Fig. 10 wiedergegeben.

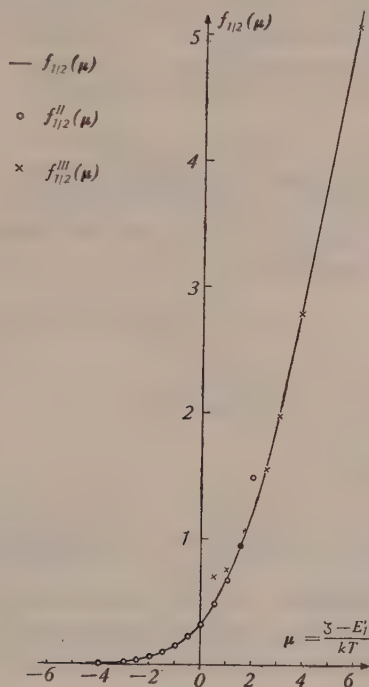


Fig. 10.

Die Funktion  $f_{1/2}(\mu)$ .

$\beta$ ) Berechnung der Zahl  $n_1$  der Leitungselektronen.

Wenn man mit dem Ausdruck (25a) für  $f_{1/2}^{\text{II}}(\mu)$  in Gleichung (23) eingeht, so erhält man mit den Abkürzungen

$$\beta = e^{e_0} = e^{\frac{\epsilon_1}{kT}} \quad B^* = \frac{1}{n_D} \left( \frac{m^* kT}{2^{1/3} \pi \hbar^2} \right)^{3/2}$$



die folgende Bestimmungsgleichung für  $e^\mu$  und damit für die Grenzenergie  $\zeta$

$$\frac{1}{1 + \beta e^\mu} = B^* \frac{e^\mu}{1 + b e^\mu + c e^{2\mu}}.$$

Die Auflösung nach  $e^\mu$  gibt

$$e^\mu = e^{\frac{\zeta - E_2'}{kT}} = \frac{(b - B^*) \pm [(B^* - b)^2 + 4(\beta B^* - c)]^{1/2}}{2(\beta B^* - c)}.$$

Durch Nullsetzen von  $b$  und  $c$  sieht man leicht, dass vor der Wurzel im Zähler nur das positive Zeichen einen physikalischen Sinn haben kann, da  $e^\mu$  immer positives Vorzeichen erhalten muss.

Die Zahl  $n_1$  der Leitungselektronen folgt jetzt durch Einsetzen dieses Ausdruckes in eine der beiden Seiten von Gleichung (22). Man berechnet

$$n_1 = n_D' \frac{2(\beta B^* - c)}{\beta(b + B^*) - 2c + [(B^* - b)^2 + 4(\beta B^* - c)]^{1/2}}. \quad (26)$$

Separiert man Temperaturabhängigkeit und Störstellendichte aus  $B^*$  ab durch die Schreibweise

$$B^* = \frac{D^*}{n_D'} T^{3/2}$$

wo

$$D^* = \left( \frac{m^* k}{2^{1/3} \pi \hbar^2} \right)^{3/2} = \frac{1}{F_0^{3/2}} \left( \frac{m k}{2^{1/3} \pi \hbar^2} \right)^{3/2} = \frac{1}{F_0^{3/2}} \cdot 4,75 \cdot 10^{15} \text{ cgs}$$

so geht (26) über in

$$n_1 = \frac{2 n_D' (\beta D^* T^{3/2} - c n_D')}{\beta (b n_D' + D^* T^{3/2}) - 2 c n_D' + \beta [(D^* T^{3/2} - b n_D')^2 + 4 n_D' (\beta D^* T^{3/2} - c n_D')]^{1/2}} \quad (27)$$

Wenn die Berechnungen für den Fall der Fig. 9c durchgeführt werden, so bekommt man die genau gleiche Formel für  $n_1$ . Die abgeleiteten Ausdrücke gelten daher gleichermassen für grüne und schwarze Kristalle.

### $\gamma$ ) Diskussion des Ausdruckes für $n_1$ .

Gültigkeitsbereich der WILSONtheorie: Setzen wir

$$c n_D' < b n_D' \ll D^* T^{3/2} \quad (28)$$

so geht (27) über in

$$n_1 = \frac{2 n_D'}{1 + \left( 1 + 4 \frac{n_D' \beta}{D^* T^{3/2}} \right)^{1/2}}. \quad (29)$$

Aus dieser Formel folgt sofort der WILSONsche Ausdruck

$$n_1 = \frac{\sqrt{n_D'}}{2} \left( \frac{2 m^* k T}{\pi \hbar^2} \right)^{3/4} e^{-\frac{E_4 - E_2'}{2 k T}}$$

wenn zugleich die Bedingung erfüllt ist

$$\beta \gg \frac{D^* T^{3/2}}{4 n_D'} \quad (30)$$

Die Freiheitszahl  $F$  werde als 1 angenommen. Dann bedeutet die Ungleichung (28) bei einer kleinsten Temperatur von  $100^\circ\text{K}$

$$n_D' \ll \frac{D^*}{b} T^{3/2} = 1,3 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}.$$

Die Ungleichung (30) sagt aus, dass andererseits der Energieunterschied  $E_4 - E_2'$  nicht zu klein werden darf. Bei einer Störstellenzahl von z. B.  $n_D' = 10^{18} \text{ cm}^{-3}$  folgt für eine höchste Temperatur  $T = 1000^\circ\text{K}$

$$\beta \gg 37,5, \text{ d. h. } E_4 - E_2' \text{ mindestens } 0,31 \text{ eV}.$$

Wird  $\beta$  so klein und die Temperatur so hoch, dass gilt

$$\beta \ll \frac{D^* T^{3/2}}{4 n_D'}$$

so folgt aus (29), dass die Zahl der Leitungselektronen gleich der Zahl der Störstellen ist.

Für die Berechnung von  $\sigma$  treffen wir die Voraussetzung, dass  $b n_D' = q D^* T^{3/2}$ , wo jedoch der Faktor  $q$  nach oben dadurch beschränkt sein soll, dass immer noch  $c n_D' \ll \beta D^* T^{3/2}$  ist. Das bedeutet, dass das quadratische Glied im Nenner von  $f_{3/2}^{(1)}(\mu)$  vernachlässigt wird. Für  $q$  folgt somit

$$q \ll \frac{b}{c} \beta_{\min}.$$

Für SiC mit  $E_4 - E_2' = 0,3 \text{ eV}$  bedeutet das für eine höchste Temperatur von  $1000^\circ\text{K}$   $q \ll 440$ .

Die Formeln werden gültig bis zu einer Störstellendichte

$$n_D' \ll q_{\max} \cdot \frac{D^* T^{3/2}}{b} = 5,7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$$

also wohl bis zu den höchsten Werten von  $n_D'$ , bei denen ein Kristallgitter noch bestehen kann.

In diesem Falle stellt sich  $n_1$  dar als

$$n_1 = \frac{2 n'_D D^* T^{3/2}}{b n'_D + D^* T^{3/2} + \left[ (D^* T^{3/2} - b n'_D)^2 + 4 n'_D D^* T^{3/2} e^{\frac{\varepsilon_1}{kT}} \right]^{1/2}} \quad (31)$$

δ) Berechnung von  $\sigma_1$ .

Geht man mit (31) ein in den allgemeinen Ausdruck für  $\sigma_1$

$$\varrho_1 = \frac{e^2}{m} n_1 F_0 \tau_1$$

und berücksichtigt  $\tau_1 = \tau_{10} T^{-3/2}$ , so erhält man

$$\sigma_1 = \frac{2 \frac{e^2}{m^*} \tau_{10} D^* n'_D}{(b n'_D + D^* T^{3/2}) + \left[ (D^* T^{3/2} - b n'_D)^2 + 4 n'_D D^* T^{3/2} e^{\frac{\varepsilon_1}{kT}} \right]^{1/2}} \quad (32)$$

Durch Nullsetzen der ersten Ableitung von (32) erhält man die Maximumsbedingung

$$e^{\frac{\varepsilon_1}{kT_0}} \left( \frac{\varepsilon_1}{kT_0} - \frac{3}{2} \right)^2 + \frac{3}{2} b \left( \frac{\varepsilon_1}{kT_0} - \frac{3}{2} \right) = \frac{3 D^* T^{3/2}}{2 n'_D} \frac{\varepsilon_1}{kT_0} \quad (33)$$

$T_0$  ist dabei die dem maximalen  $\sigma_1$  entsprechende Temperatur.  $\varepsilon_1$  kann wie schon gezeigt aus der Steilheit der Kurve  $\log \sigma T^{3/4}$  in Funktion von  $1/T$  entnommen werden, wobei natürlich darauf zu achten ist, dass man die Tangente dort an die Kurve legt, wo die Entartung noch keinen merklichen Einfluss hat.

Somit sind wir imstande, mit Hilfe von Gleichung (33) die Grösse

$$\frac{D^*}{n'_D} = s$$

und damit das Produkt

$$n'_D F_0^{3/2} = u_1$$

zu bestimmen. Andererseits folgt bei gemessener HALLkonstante  $R$  für eine Temperatur  $T_1$  im WILSONgebiet

$$n_1 = \frac{3\pi}{8e} \cdot \frac{1}{R} = (\alpha_0 \cdot n'_D)^{1/2} e^{-\frac{\varepsilon_1}{2kT}}$$

woraus der Wert des Quotienten  $\frac{n'_D}{F_0^{3/2}} = u_2$  berechnet werden kann.

Damit lässt sich die Freiheitszahl im Leitungsband bestimmen aus  $F_1 = \left( \frac{u_1}{u_2} \right)^{1/3} \cdot n'_D$  geht aus  $(u_1 u_2)^{1/2}$  hervor. Es gibt aber nur

im Falle (17b) die wirkliche Zahl der Spenderstellen an. Im Fall (17a) lässt sich damit das Verhältnis von Elektronenempfängern und Elektronenspendern nach Gl. (20a) roh abschätzen.

Die auf diese Weise bestimmten Freiheitszahlen im Leitungsband liegen sämtliche zwischen 0,06 und 0,3.

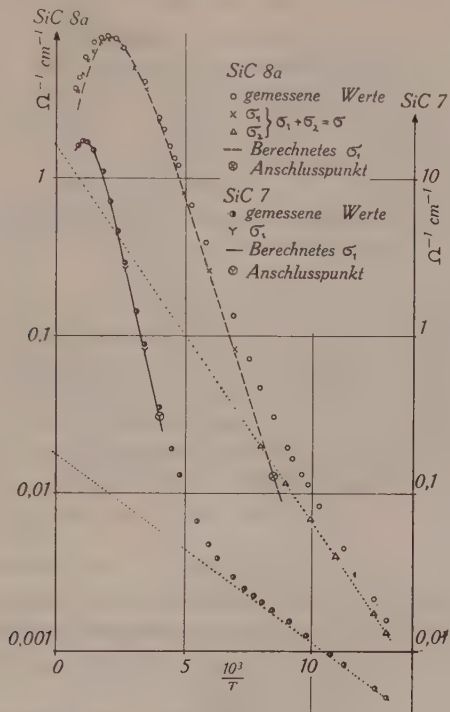


Fig. 11.

Die Störstellendichte  $n'_D$  wird von der Grössenordnung  $10^{18}$  bis  $10^{20} \text{ cm}^{-3}$ .

Mit diesen Störstellendichten und Freiheitszahlen ist in dem in Frage stehenden Temperaturgebiet  $b \cdot n'_D \ll D^* \cdot T^{3/2}$ , so dass sich Formel (32) mit den Abkürzungen

$$Q^* = 2 \frac{e^2}{m^*} \tau_{10} n'_D \quad s = \frac{D^*}{n'_D}$$

vereinfacht zu

$$\sigma_1 = Q^* \frac{T^{-3/2}}{1 + \left[ 1 + \frac{4}{s} T^{-3/2} e^{\frac{\epsilon_1}{kT}} \right]^{1/2}} \quad (34)$$



$\epsilon_1$  ist aus der Kurve  $\log \sigma, T^{3/4}$  in Funktion von  $1/T$  zu bestimmen.  $s$  folgt aus Gleichung (33).  $Q^*$  ergibt sich durch Anschluss des Ausdrucks (34) an einen Punkt der aus den Messungen erhaltenen  $\sigma_1$ -Kurve. Dabei muss darauf geachtet werden, dass nur der Anteil  $\sigma_1$  (siehe Gleichung (2)) durch die obige Theorie dargestellt wird. Man hat daher vor der Bestimmung von  $Q^*$  die gemessene  $\sigma$ -Kurve in ihre Komponenten  $\sigma_1$  und  $\sigma_2$  zu zerlegen.

Die gute Übereinstimmung zwischen der nach Gleichung (34) berechneten und der gemessenen  $\sigma_1$ -Kurve geht aus Fig. 11 für je einen grünen und einen schwarzen Kristall hervor. Der anomale Temperaturgang der elektrischen Leitfähigkeit des Siliciumcarbids bei hohen Temperaturen ist somit auf die beginnende Entartung des Elektronengases infolge der hohen Störstellenkonzentrationen zurückzuführen.

#### e) Abschätzung der Relaxationszeit.

Da jetzt  $n'_D$  und  $F$  bekannt sind, könnte aus dem Wert von  $Q^*$  die Relaxationszeit  $\tau$  berechnet werden. Wir ziehen aber vor, dazu Gleichung (13) und den aus der Anpassung der  $R\sigma$ -Kurven bestimmten Wert  $a'_1/a_1$  zu verwenden, weil dort  $n'_D$  nicht eingeht. Wir erhalten für Zimmertemperatur bei SiC Relaxationszeiten von der Grössenordnung  $10^{-7}$  sec, wie sie auch bei Metallen vorkommen.

Zum Schlusse benützen wir gerne die Gelegenheit, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER für das anregende Interesse, welches er den vorliegenden Untersuchungen entgegenbrachte, sowie für die Überlassung der experimentellen Hilfsmittel herzlichst zu danken.

Zürich, Physikalisches Institut der ETH.

# Influence des liaisons moléculaires dans la diffusion des neutrons thermiques par l'azote

par A. Gibert\*), R. Keller et J. Rossel.

(20. VIII. 1946.)

*Sommaire.* La possibilité d'investigation par diffusion non-cohérente des neutrons lents, de changements de structure intervenant dans les transitions de premier ou de second ordre est étudiée dans le cas de l'azote.

Les variations de la section de diffusion par atome observées à la liquéfaction (diminution de 13%) et au point de transition du solide à 35,4° K (augmentation de 9% env.), ainsi qu'une nette diminution avec la température sur la phase liquide, donnent à la méthode un premier fondement. Une discussion quantitative n'est encore directement possible que pour la phase gazeuse.

La valeur de  $\sigma$  obtenue dans ce dernier cas,  $11,1 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ , est en très bon accord avec la mesure la plus récente,  $11,0 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$  <sup>16)</sup>. On en déduit pour section de diffusion du noyau d'azote libre initialement au repos la valeur  $\sigma = 10,5 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ .

## 1. Introduction.

Les valeurs connues des sections efficaces de diffusion totale des différents éléments chimiques sont en majorité peu cohérentes.

Ces discrepances s'expliquent d'une part par le fait que les neutrons présentent des spectres d'énergie différents suivant les cas et que leur collimation est difficile et imparfaite, d'autre part par l'influence des forces moléculaires qui peut être considérable, circonstance en général délibérément négligée.

Certains effets de non-additivité des sections efficaces pour différentes combinaisons chimiques d'un même élément ont été nettement observés<sup>1)</sup>. De plus des travaux théoriques et expérimentaux ont étudié l'influence, dans le ralentissement des neutrons par les substances hydrogénées, de la liaison du proton<sup>2)</sup> <sup>3)</sup> <sup>4)</sup>.

D'autre part les phénomènes d'interférence intervenant pour les neutrons de très faible énergie ont été mis en évidence<sup>5)</sup> <sup>6)</sup> et étudiés théoriquement dans les cas les plus simples de structure cristalline<sup>7)</sup> <sup>8)</sup>, et pour les molécules d'hydrogène léger et lourd, para et ortho<sup>9)</sup> <sup>10)</sup>.

\*) Boursier de l'Etat portugais (Instituto para a Alta Cultura).

Jusqu'à maintenant ces études ont surtout eu pour but de délimiter l'effet moléculaire de façon à pouvoir déterminer le phénomène de diffusion nucléaire pur. Dans le cas particulier de  $H_2$  normal et des molécules hydrogénées gazeuses, une méthode générale de calcul a été développée<sup>11)</sup> qui a été appliquée expérimentalement pour l'hydrogène<sup>12)</sup>.

Inversement la perturbation peut être étudiée pour elle-même. Dans ce sens l'emploi des neutrons pour des investigations de structures semble présenter un intérêt considérable<sup>13)</sup> <sup>14)</sup>.

Cependant l'étude de la variation de la section de diffusion des neutrons lents en fonction de la température et de l'état d'aggrégation pour un même élément ou composé chimique n'as pas, à notre connaissance, été faite systématiquement.

Il semble que cette mesure puisse fournir des indications sur la structure moléculaire dans les états gazeux, liquide et solide. On sait que des investigations de ce genre par l'effet Raman permettent des conclusions intéressantes sur les liaisons moléculaires.

Les neutrons lents sont sensibles aux forces moléculaires indépendamment des charges atomiques et des phénomènes de polarisation, ce qui n'est pas le cas pour la diffusion de la lumière et des rayons X ou la diffraction des électrons. Ils pourront donc donner des indications complémentaires utiles.

Pour les diffuseurs à l'état gazeux, la variation de la section efficace de diffusion avec la température (effet Doppler) peut être prévue de façon simple dans les conditions suivantes:

L'énergie des neutrons est petite par rapport à l'énergie de vibration minimum de la molécule; cette dernière est formée d'atomes de masse grande vis-à-vis de celle du neutron (masse réduite  $\cong$  masse neutron).

Il suffit alors de tenir compte de la distribution de vitesses des molécules et de la répartition des masses dans la molécule.

A une bonne approximation, la section de diffusion par atome est donnée par l'expression (SACHS et TELLER<sup>11)</sup>):

$$\sigma = \sigma_0 \left( \frac{M+m}{M_e+m} \right)^2 \left( \frac{M_e}{M} \right)^2 \left[ 1 + \frac{1}{2\xi^2} \right] \cdot \Phi(\xi) + \frac{1}{\sqrt{\pi\xi}} \cdot e^{-\xi^2} \quad (I)$$

où

$\sigma_0$  = section de diffusion pour le noyau (de masse  $M$ ) libre et initialement au repos  
 $M_e$  = moyenne de la masse effective de la molécule suivant 3 directions caractéristiques d'incidence.

$m$  = masse du neutron.

$$\xi^2 = \frac{M_e \cdot E_n}{m k T}; \quad E_n = \text{Energie des neutrons}; \quad \Phi(\xi) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^\xi e^{-x^2} dx.$$

On voit que l'effet consiste dans une diminution de  $\sigma$  avec  $T$  et que cet effet est pratiquement négligeable pour des noyaux diffusants de masse relativement grande.

Dans l'état liquide on doit s'attendre d'une part à une réduction des mouvements thermiques de translation, ce qui conduit à une diminution de  $\sigma$  (réduction de la largeur des raies dans l'effet Raman). D'autre part, comme la section de diffusion est proportionnelle à la masse réduite du neutron et du système diffusant, un resserrement des liaisons moléculaires peut conduire à un accroissement de  $\sigma$ , d'où possibilité d'étude du champ moléculaire. Une diminution de la distance moyenne des centres diffusants a tendance à accentuer des phénomènes éventuels d'interférence avec, comme résultat, une diminution de  $\sigma$ . Cependant pour des neutrons de 290° K, ces effets d'interférence doivent être en général minimes sinon négligeables.

Une mesure de  $\sigma$  en fonction de la température semble devoir permettre une séparation des effets indiqués.

Dans l'état solide, les phénomènes de transition qui caractérisent certaines substances et qui consistent soit dans une variation de structure cristalline, soit dans la "congélation" de certains degrés de liberté de rotation (passage de la rotation libre au mouvement de libration) ou encore dans une polarisation spontanée (électricité Seignette), sont susceptibles d'être décelés et étudiés par une variation éventuelle de la section de diffusion (indépendamment des effets d'interférence qui constituent un sujet en soi).

Pour étudier l'influence du changement d'état (transition du premier ordre), il est nécessaire, vu l'influence de la température, d'opérer à des températures aussi voisines que possible de part et d'autre de la transition. Dans l'ordre d'idées esquissé ici, nous avons entrepris la mesure de la section totale de diffusion des neutrons thermiques de 290° K dans l'azote pour les différents états d'agrégation et sur un domaine de températures compris entre 290° et 20° K.

Le choix de l'azote se justifie pour les raisons suivantes: La molécule  $N_2$  est de structure simple et le gaz se laisse facilement liquéfier et solidifier. La masse du noyau étant relativement petite, une variation de la masse effective, conditionnée par un changement dans les forces intermoléculaires, peut avoir une influence mesurable sur le choc du neutron. Dans l'état solide,  $N_2$  présente un point de transition fort bien marqué à 35,4° K<sup>15</sup>). Enfin les valeurs connues des différentes sections efficaces présentent des in-



cohérences qu'une nouvelle mesure peut contribuer à éliminer. Ces valeurs sont indiquées dans le tableau suivant :

$\sigma_{\text{tot}} (10^{-24} \text{ cm}^2) :$	12,2 $\pm$ 0,2	CARROL <sup>16</sup> ), gaz 300° K
	12,8	BRICKWEDDE, DUNNING etc. <sup>17</sup> ), liq. 77° K
$\sigma_{\text{diff}} (10^{-24} \text{ cm}^2) :$	8,2	GOLDHABER et BRIGGS <sup>18</sup> ) (de $\text{NaN}_3$ )
$\sigma_{\text{capt}} (10^{-24} \text{ cm}^2) :$	1,2	LAPORTE et RASETTI <sup>19</sup> )
	1,05	VOLZ <sup>20</sup> )

## 2. Dispositif expérimental et méthode de mesure.

Le dispositif employé est essentiellement le même que celui décrit dans un article précédent<sup>12</sup>).

La chambre de diffusion se trouve à l'intérieur de la chambre thermique à double paroi de construction spéciale d'un liquéfacteur lui aussi déjà décrit ailleurs<sup>21</sup>).

Les températures au-dessus de 77° K (azote liquide) sont obtenues en introduisant dans le récipient à double paroi des quantités appropriées d'azote liquide et en ajustant l'état thermique stationnaire à la température désirée par réglage du vide à l'intérieur de la double paroi.

Entre 77° K et 55° K (température de l'azote solide), le réglage s'opère en pompant le liquide réfrigérant. Les températures inférieures sont produites par le fonctionnement du liquéfacteur proprement dit.

Nous avons contrôlé régulièrement les températures du diffuseur au moyen de couples thermoélectriques et d'un thermomètre à résistance de platine faisant corps avec la chambre de diffusion. De plus la pression de gaz ou de vapeur dans cette dernière, indiquée en permanence par un manomètre de précision, constituait un contrôle supplémentaire de température.

Nous avons employé deux chambres de diffusion cylindriques massives, l'une de 11,6 cm. de longueur pour l'azote gazeux, l'autre de 2,0 cm. pour l'azote liquide et solide. Toutes deux sont fermées par des fenêtres d'aluminium de 3 mm. d'épaisseur — de façon à pouvoir supporter des pressions de 20 atm. et plus sans se déformer — et de 4 cm. de diamètre.

Le détail de la construction est visible sur la figure 1, où est représentée la chambre de petit format.

Les neutrons étaient produits dans un bloc de paraffine de la forme classique dite "Howitzer" par une source de Ra + Be et Rn + Be de 250 à 300 mC au total.

Détection et enregistrement s'opéraient par chambre de bore ( $3 \text{ atm. BF}_3$ ), amplificateur linéaire et compteur "scale of two".

La collimation spécialement soignée délimitait un faisceau d'ouverture maximum d'environ  $15^\circ$ .

La mesure de  $\sigma$  est sensible à la valeur de la densité de la substance diffusante ou plus exactement au nombre de molécules par  $\text{cm}^3$ . Une détermination précise de cette dernière grandeur est donc nécessaire. Nous en avons obtenu la valeur par détermination du volume du gaz contenu dans le diffuseur en le recueillant après

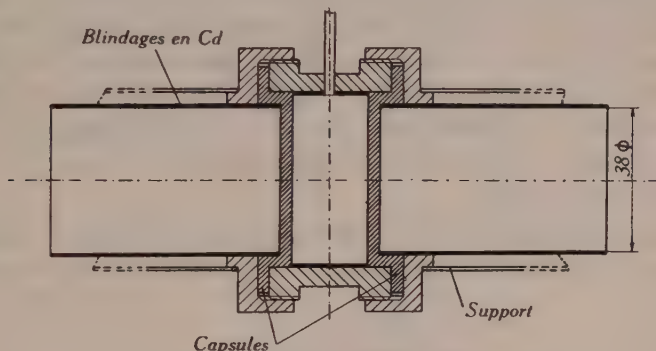


Fig. 1.

chaque série de mesures dans un récipient de volume exactement connu et évacué.

Pour la diffusion à l'état gazeux nous avons pu faire un contrôle de cette méthode à partir de la pression, de la température du gaz et des constantes de VAN DER WAALS pour l'azote. Le remplissage pour l'état solide se faisait toujours en envoyant dans le diffuseur refroidi l'azote gazeux sous une pression de plusieurs atmosphères, de façon à obtenir une masse solide aussi compacte que possible.

La mesure de la section totale (diffusion + capture) des neutrons thermiques revient à l'enregistrement des 4 nombres :

$N$  avec interposition de la substance diffusante seule,  $N_0$  sans substance,  $N'$  avec substance et Cd,  $N'_0$  avec Cd seul. On en tire la section efficace par atome  $\sigma$  par la formule :

$$\sigma = \frac{1}{nd} \log \frac{N_0 - N'_0}{N - N'}$$

$d$  = longueur efficace de la chambre de diffusion

$n$  = nombre d'atomes d'azote par  $\text{cm}^3$ .

De façon à éliminer l'influence de variations éventuelles de sensibilité de l'amplificateur, les mesures ont été effectuées suivant

les cas en cycles de 20 ou 40 min., soit 5 ou 10 min. pour l'enregistrement de chaque nombre.

Comme il n'était pas possible pour des raisons matérielles évidentes de remplir et de vider la chambre de diffusion pour chaque intervalle, nous avons eu recours pour la mesure de  $N_0$  et  $N_0'$  à l'emploi d'un diffuseur témoin. Le rapport de son facteur de transmission à celui de la chambre de diffusion vide avait été préalablement mesuré avec grande précision et trouvé égal à  $1,25 \pm 0,014$ .

Les valeurs de  $\sigma$  ont été calculées pour chaque série de mesure à partir des 4 nombres enregistrés. Les différentes séries de mesures effectuées pour un même  $\sigma$  étaient toutes compatibles entre elles. La valeur finale de  $\sigma$  a été prise égale à la moyenne pondérée de ces séries. Nous avons calculé les poids ainsi que l'erreur quadratique moyenne du résultat sur la base de la statistique de Poisson.

Le nombre de neutrons lents enregistré dans chaque cas était de l'ordre de 15 000.

L'erreur provenant de la détermination du nombre  $n \cdot d$ , au maximum 0,5%, n'excédait en aucun cas le  $1/5$  de l'erreur statistique.

### 3. Résultats et discussion.

Nous avons effectué une mesure de transmission pour la phase gazeuse à 125° K. L'effet de température attendu étant négligeable, cette mesure représente avant tout, par comparaison avec la valeur de  $\sigma$  mesurée par CARROL à 300° K, un test de bon fonctionnement de notre dispositif.

Pour la phase liquide, nous avons choisi les deux températures de 100° — voisine de 125° — et de 65° — juste au-dessus du point de solidification à 63°.

La phase solide présentait un double intérêt, d'abord pour le passage liquide-solide, ce qui nous a fait choisir un premier point à 60°, ensuite pour la transition connue de l'azote solide à 35,4° K<sup>15</sup>), caractérisée probablement par une "congélation" partielle des mouvements de rotation libre des molécules. Nous avons mesuré au-dessus de ce point, à 40° K, et au-dessous, à 20° K.

Nos résultats sont résumés dans le tableau suivant. A côté des sections totales mesurées, nous indiquons les sections de diffusion moléculaire par atome obtenues en soustrayant des premières la valeur de la section de capture mesurée par LAPOINTE et RASSETTI<sup>19</sup>).  $\sigma = 1,2 \cdot 10^{-24}$  cm<sup>2</sup> à 0,5% près environ.

$T (^{\circ} \text{K})$	$\sigma_{\text{tot}} \cdot 10^{24} \text{ cm}^2$	$\sigma_{\text{diff}} \cdot 10^{24} \text{ cm}^2$	%
300 <sup>0</sup> gaz. *)	$12,2 \pm 0,2$	11,0	100
125 <sup>0</sup> gaz.	$12,3 \pm 0,7$	11,1	101
100 <sup>0</sup> liq.	$10,8 \pm 0,4$	9,6	87
65 <sup>0</sup> liq.	$9,7 \pm 0,3$	8,5	78
60 <sup>0</sup> sol.	$9,9 \pm 0,2$	8,7	79
40 <sup>0</sup> sol.	$10,5 \pm 0,6$	9,3	84
20 <sup>0</sup> sol.	$11,4 \pm 0,5$	10,2	93

En reportant  $\sigma_{\text{tot}}$  avec son erreur en fonction de la température, on obtient le graphique suivant :

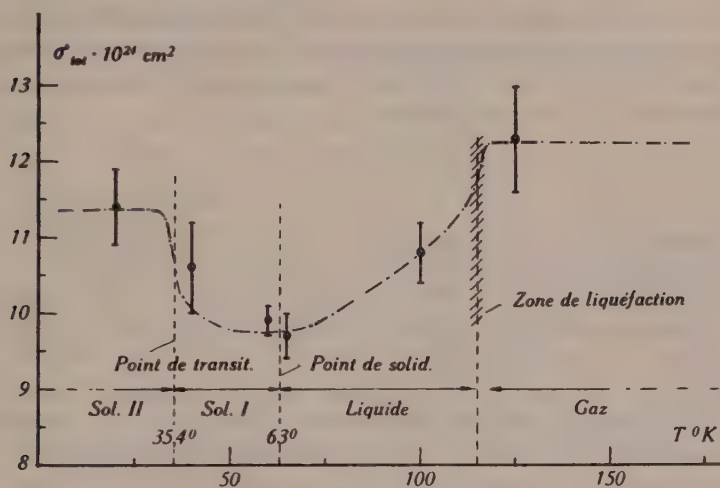


Fig. 2.

La courbe pointillée continue est quelque peu arbitraire. En particulier le point à 40<sup>0</sup> avec son erreur considérable ne détermine qu'assez mal l'allure de la courbe pour le premier domaine solide. Les erreurs statistiques plus grandes des deux derniers points sont dues à la difficulté plus grande aussi de maintenir constantes pendant de longues périodes les très basses températures, ce qui limite la durée des séries de mesure.

1) Phase gazeuse. — Comme prévu l'effet de température est indécélable entre 300<sup>0</sup> et la température de liquéfaction. Théoriquement la formule (I) indique une diminution de la section efficace de 1% seulement.

\*) Valeur de CARROL.



En effet on a pour l'azote :

$M = 14$ ;  $M_e$  = moyenne des valeurs caractéristiques du tenseur de masse  $= \frac{1}{3} (2M + M + M) = 18,66$ .

$$m = 1. \quad \xi^2 = \frac{M_e E_n}{m k T} = 28 T_n / T.$$

d'où :

$$\left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)_{300^\circ} = 1,05. \quad \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)_{120^\circ} = 1,04.$$

La liaison N—N de la molécule caractérisée par une énergie de vibration minimum de  $1432,5 \text{ cm}^{-1}$ , soit  $0,18 \text{ eV}$ , peut être considéré comme rigide pour des neutrons d'énergie moyenne de  $0,037 \text{ eV}$  et n'a pas pratiquement d'influence sur la diffusion.

A partir de la valeur de  $\sigma$  pour l'azote gazeux (de  $300^\circ$  à  $120^\circ \text{K}$ ), soit  $11,0 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$  et du rapport  $\sigma/\sigma_0$ , on obtient pour section de diffusion des neutrons thermiques par le noyau d'azote libre et initialement au repos, la valeur :

$$\sigma_0 = 10,5 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2.$$

C'est en principe cette valeur qui doit être prise comme base de comparaison entre les mesures effectuées avec différentes combinaisons chimiques et dans différents états d'agrégation.

2) Phase liquide. — L'effet d'agrégation entre la phase gazeuse et la phase liquide paraît certain ; la chute de  $\sigma$  est de 13% environ. La différence de température n'étant que de  $25^\circ$ , on pourrait admettre une diminution de l'amplitude des mouvements thermiques de translation due à la liquéfaction et suffisamment prononcée pour influencer fortement  $\sigma$ . Cet effet équivaut cependant à une diminution de la masse effective du noyau dans la molécule au delà des limites du possible.

Il est très improbable que cette diminution de  $\sigma$  puisse provenir de phénomènes d'interférence intervenant pour le liquide : la distance moyenne des centres diffusants dans le liquide est d'environ  $4 \text{ Å}$ , donc suffisamment grande par rapport à la longueur d'onde des neutrons —  $1,8 \text{ Å}$  en moyenne — pour exclure un effet sensible de diffusion cohérente. La situation est identique pour le solide où la distance entre atomes est pratiquement la même.

A partir de  $100^\circ$ , la diminution de  $\sigma$  se poursuit, mais plus lentement, sans doute par suite de l'abaissement de la température, puisque nous mesurons à  $65^\circ$  un  $\sigma$  de 9% inférieur.

Il ne semble pas qu'on puisse déduire de ces mesures un resserrement des liaisons moléculaires se manifestant par une augmentation de la section efficace.

3) Phase solide. — L'absence de variation de  $\sigma$  pour la transition du liquide au solide indique un changement minime, sinon nul, des liaisons lors de la solidification. Pour les raisons données plus haut, et par suite de la structure polycristalline certainement très accentuée de la substance diffusante, un effet éventuel d'interférence dans le cristal est à rejeter.

La mesure à  $40^{\circ}$  ne permet pas d'indiquer avec précision comment varie  $\sigma$  sur la phase solide. Il y a tout lieu d'admettre que  $\sigma$  reste constant ou a tendance à décroître légèrement avec la température jusqu'à la transition du premier au second état solide. L'effet de cette transition sur la section de diffusion est nettement marqué par les deux mesures à  $40^{\circ}$  et  $20^{\circ}$  K, indiquant une augmentation d'au moins 9%.

Cette sensibilité des neutrons à la modification du champ moléculaire intervenant dans la transition ouvre à la méthode étudiée ici une perspective intéressante.

Sans certaines hypothèses sur la transition elle-même et sans schéma théorique en décrivant l'influence sur la diffusion des neutrons, une discussion quantitative de l'effet n'est pas immédiatement possible.

Remarquons que l'emploi de neutrons monocinétiques, facilité par les développements actuels des méthodes de production des neutrons (piles d'uranium à réaction en chaîne), doit conduire à une très sensible amélioration de la méthode.

Nous nous réservons de discuter dans un prochain travail de manière plus approfondie les résultats exposés ici en même temps que ceux obtenus en étudiant de la même façon la liaison-hydrogène dans  $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ .

En terminant il nous est agréable d'exprimer notre gratitude à M. le professeur SCHERRER pour son intérêt, ses encouragements et l'aide matérielle qu'il nous a généreusement accordée.

Zurich, Institut de Physique de l'E.P.F.

#### Bibliographie.

- 1) N. KIMURA, Imp. Acad. Tokyo Proc. **15**, 214 (1939).
- 2) E. AMALDI et E. FERMI, Phys. Rev. **50**, 899 (1936).
- 3) H. A. BETHE, Rev. Mod. Phys. **9**, 124 (1937).
- 4) N. ARLEY, Medd. Danske Vid. Selskab **16**, 1 (1938).
- 5) H. G. BEYER et M. D. WHITAKER, Phys. Rev. **57**, 976 (1940).
- 6) F. RASETTI, Phys. Rev. **58**, 321 (1940).
- 7) G. C. WICK, Phys. ZS. **38**, 403 et 689 (1937).

- <sup>8)</sup> R. WEINSTOCK, Phys. Rev. **61**, 1 (1944).
  - <sup>9)</sup> J. SCHWINGER et E. TELLER, Phys. Rev. **52**, 286 (1937).
  - <sup>10)</sup> M. HAMERMESH et J. SCHWINGER, Phys. Rev. **69**, 145 (1946).
  - <sup>11)</sup> R. G. SACHS et E. TELLER, Phys. Rev. **60**, 18 (1941).
  - <sup>12)</sup> A. GIBERT et J. ROSSEL, Helv. Phys. Acta **19**, 285 (1946).
  - <sup>13)</sup> O. HALPERN et M. H. JOHNSON, Phys. Rev. **55**, 898 (1939).
  - <sup>14)</sup> F. C. NIX, H. G. BEYER et J. R. DUNNING, Phys. Rev. **58**, 1031 (1940).
  - <sup>15)</sup> L. PAULING, Phys. Rev. **36**, 430 (1930).
  - <sup>16)</sup> H. CARROL, Phys. Rev. **60**, 702 (1941).
  - <sup>17)</sup> F. G. BRICKWEDDE, J. R. DUNNING, A. J. HOGE et J. H. MANLEY, Phys. Rev. **54**, 266 (1938).
  - <sup>18)</sup> M. GOLDBABER et G. H. BRIGGS, Proc. Roy. Soc. **162**, 127 (1937).
  - <sup>19)</sup> C. LAPOINTE et F. RASETTI, Phys. Rev. **58**, 554 (1940).
  - <sup>20)</sup> H. VOLZ, ZS. f. Phys. **121**, 232 (1943).
  - <sup>21)</sup> A. GIBERT et J. ROSSEL, Helv. Phys. Acta **18**, 343 (1945).
-

## Zur Theorie singulärer Magnetpole

von Pierre Paul Banderet.

(20. VIII. 1946.)

*Zusammenfassung.* Im Anschluss an Arbeiten von DIRAC und FIERZ werden die singulären Magnetpole weiter untersucht. Die vorliegende Arbeit behandelt:

1) Die Streuung von geladenen Teilchen im Feld eines singulären Magnetpols. Das Problem lässt sich durch eine Reihenentwicklung nach Kugelwellen lösen. Das Resultat ist ähnlich demjenigen, das die klassische Mechanik liefert.

2) Die Eigenfunktionen der Diracschen Gleichung eines elektrisch geladenen Teilchens im magnetischen Coulomb-Feld. Physikalisch brauchbare Eigenfunktionen gibt es nur im Falle von Elektronen; für Teilchen mit anderem magnetischen Moment ist die Diracsche Gleichung singulär. Die Eigenfunktionen des Elektrons werden aufgestellt.

### Einleitung.

In der klassischen Elektrodynamik ist es möglich, magnetische Ströme und Ladungen einzuführen. Die magnetische Ladung transformiert sich bei Lorentz-Transformationen wie ein Pseudoskalar. Seien nun  $\mathfrak{m}$  und  $m$  die magnetische Strom- bzw. Ladungsdichte, so lauten die zugehörigen Maxwell'schen Gleichungen:

$$\operatorname{rot} \mathfrak{E} + \frac{1}{c} \dot{\mathfrak{H}} = -\frac{4\pi}{c} \mathfrak{m}, \quad \operatorname{div} \mathfrak{H} = 4\pi m.$$

Diese lassen sich im allgemeinen nicht mehr durch Einführung von Potentialen:

$$\mathfrak{E} = -\operatorname{grad} V - \frac{1}{c} \dot{\mathfrak{A}}, \quad \mathfrak{H} = \operatorname{rot} \mathfrak{A}$$

integrieren. In den Gleichungen der Wellenmechanik kommen aber diese Potentiale explicite vor. Nur ein statisches magnetisches Coulomb-Feld:

$$\mathfrak{H}_r = \frac{p}{r^2}, \quad \mathfrak{H}_\theta = \mathfrak{H}_\varphi = 0$$

kann durch ein Potential

$$\mathfrak{H} = \operatorname{rot} \mathfrak{A}$$

beschrieben werden. Die zugehörige Ladung ist aber notwendig eine Punktladung, ein singulärer Magnetpol.



Nach dem Satz von STOKES gilt für eine geschlossene Fläche  $\Sigma$  und ein reguläres, eindeutiges Vektorfeld  $\mathfrak{A}$ :

$$\int_{\Sigma} \text{rot } \mathfrak{A} d\sigma = 0.$$

Andererseits ergibt die Integration über eine Kugel um den Nullpunkt:

$$\int \mathfrak{H}_r d\sigma = p \int \frac{1}{r^2} d\sigma = 4\pi p.$$

Daher ist das zugehörige Vektorpotential  $\mathfrak{A}$  entweder nicht regulär wie:

$$\mathfrak{A}_r = \mathfrak{A}_\theta = 0, \quad \mathfrak{A}_\varphi = \frac{p}{r} \frac{\sin \theta}{1 + \cos \theta} \quad (1)$$

was unendlich wird für  $\theta = \pi$ , oder nicht eindeutig wie:

$$\mathfrak{A}_r = \mathfrak{A}_\varphi = 0, \quad \mathfrak{A}_\theta = -\frac{p}{r} \varphi \sin \theta.$$

In beiden Fällen gibt es singuläre Linien im Raum; denn auf jeder Fläche um einen einzelnen Magnetpol gibt es mindestens einen singulären Punkt. Im zweiten Fall ist er solcher Art, dass das Vektorpotential seinen Wert ändert, wenn man ihn umfährt. Diese singulären Linien kann man durch Umeichen des Vektorpotentials im Raume verschieben, aber ihre Endpunkte liegen fest in den Singularitäten des Feldes.

DIRAC<sup>1)</sup> ist bei seiner Begründung der Wellenmechanik der Magnetpole von der Betrachtung der Phase der  $\psi$ -Funktion ausgegangen. Die Phase braucht an sich keine eindeutige Ortsfunktion zu sein, da ihr keine direkte physikalische Bedeutung zukommt. DIRAC untersuchte, welcher Art die Mehrdeutigkeit sein könne, ohne den allgemeinen Formalismus der Wellenmechanik zu stören. Er zeigte, dass es im Raume Kurven gibt, auf denen die  $\psi$ -Funktion verschwindet (Knotenlinien) und auf welchen die Phase von  $\psi$  singulär sein kann: bei einem Umlauf um eine solche Kurve kann die Phase von  $\psi$  ihren Wert um einen festen (das heisst nur von der Kurve abhängigen) Betrag ändern. Diese Knotenlinien lassen sich durch Umeichen der Phase (resp. des Vektorpotentials) im Raume verschieben. Ihre Endpunkte liegen jedoch fest in den Singularitäten des elektromagnetischen Feldes, die sich als singuläre, quantisierte Magnetpole erweisen.

Anschliessend an diese Arbeit wurde von J. TAMM<sup>2)</sup> die Bewegung eines Elektrons in einem magnetischen Coulomb-Feld untersucht.

Er bestimmte die Eigenfunktionen der zugehörigen Schrödinger-Gleichung:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \left\{ \frac{\partial^2 \psi}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial \psi}{\partial r} + \frac{1}{r^2} \left[ \frac{\partial^2}{\partial \theta^2} + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2}{\partial \varphi^2} + \right. \right. \\ \left. \left. + \frac{2i\mu}{1+\cos\theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} + \operatorname{ctg} \theta \frac{\partial}{\partial \theta} + \mu^2 \frac{1-\cos\theta}{1+\cos\theta} \right] \psi \right\} = E \psi. \quad (2)$$

Hier bedeutet  $\mu$  die dimensionslose Zahl  $\frac{ep}{\hbar c}$ .

FIERZ<sup>3)</sup> hat eine einfachere Form der Lösungen von (2) angegeben. Seine Herleitung stützt sich auf die Transformationseigenschaften des Problems bei Drehungen. Die Eigenfunktionen von (2) haben die Gestalt:

$$\psi_{l,m}(kr, \theta, \varphi) = \text{const.} \frac{1}{\sqrt{kr}} J_{L+\frac{1}{2}}(kr) e^{i(m+\mu)\varphi} {}^\mu Y_{l,m}(\cos \theta). \quad (3)$$

Dabei ist  $\hbar k$  der Betrag des Teilchenimpulses.  $J_{L+\frac{1}{2}}$  ist die Besselfunktion mit dem Index  $L+\frac{1}{2} = \sqrt{(l+\frac{1}{2})^2 - \mu^2}$ .

Die  ${}^\mu Y_{l,m}(\cos \theta)$  lassen sich wie folgt darstellen ( $x = \cos \theta$ ):

$${}^\mu Y_{l,m} = (1+x)^{-\frac{(m-\mu)}{2}} (1-x)^{-\frac{m+\mu}{2}} \frac{d^{l-m}}{dx^{l-m}} [(1+x)^{l-\mu} (1-x)^{l+\mu}]$$

wobei  $m$ ,  $\mu$  und  $l \geq \mu$  zugleich halb- oder ganzzahlig sind\*).

In der vorliegenden Arbeit werden gewisse Besonderheiten dieser Eigenfunktionen an Hand eines speziellen Problems (Streuung an einem magnetisch geladenen Zentrum) hervorgehoben. In einem zweiten Teil werden die Transformationseigenschaften des Problems dazu benützt, um die zugehörige Diracsche Gleichung zu lösen.

## I. Der magnetische Pol als Streuzentrum.

### a) Behandlung nach der Wellenmechanik.

Wir betrachten das Problem der Streuung an einem magnetischen Teilchen, das wir uns als schwer gegen die gestreuten Partikel vorstellen. Die Differentialgleichung des Problems ist (2), wobei  $\psi\psi^*$  die Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens beschreibt, während der unendlich schwere Streuer im Nullpunkt ruht. Die Lösung, welche dieses Streuproblem beschreibt, setzt sich linear aus den Funktionen (3) zusammen. Wir werden die Konstanten so wählen, dass durch die Ebene  $z = \infty$  ein homogener Teilchenstrom in der

\*) Während  $l$  und  $m$ , wie üblich, dem Gesamtpulsmoment und seiner  $z$ -Komponente zugeordnet sind, entspricht  $L$  dem Impulsmoment der Bewegung des Teilchens.

— $z$ -Richtung fliesst (diese Festsetzung ist bei der hier verwendeten Eichung des Potentials die einfachste). Es wird sich zeigen, dass diese Randbedingung sich so präzisieren lässt, dass die Konstanten dadurch völlig bestimmt werden.

Bei den meisten anderen Streuproblemen, bei denen das Potential nur vom Abstand  $r$  abhängt, führt das Verfahren von FAXÉN und HOLTSMARK (Z.S. f. Ph. 45, 307 (1927)) zum Ziel. Man nimmt dabei an, dass das Potential mit wachsendem  $r$  hinreichend rasch verschwindet, so dass sich die radialsymmetrischen Lösungen  $\psi_l(kr, \cos \theta)$  asymptotisch wie

$$\frac{1}{kr} P_l(\cos \theta) \sin \left( kr - \frac{1}{2} \pi l + \delta_l \right)$$

verhalten. Macht man nun den Ansatz

$$\psi = \sum_{l=0}^{\infty} C_l \psi_l(kr, \cos \theta), \quad (4)$$

so sind die  $C_l$  durch die Forderung bestimmt, dass  $\psi$  sich für grosse  $r$  wie:

$$e^{ikr \cos \theta} + \frac{1}{r} e^{ikr} f(\theta) + \dots \quad (5)$$

verhält; das heisst einer ebenen Welle soll sich eine Streuwelle überlagern, die nur auslaufende Kugelwellen  $\sim \frac{1}{r} e^{ikr}$  enthält. Für  $C_l$  findet man bekanntlich:

$$C_l = (2l+1) i^l e^{i\delta_l}.$$

Dieses Verfahren ist nun bei unserem Problem nicht anwendbar, weil die Winkelabhängigkeit der Eigenfunktionen nicht durch Kugelfunktionen gegeben ist. Vielmehr kommen hier die achsensymmetrischen, normierten Funktionen:

$${}^{\mu}Y_{l,-\mu} = \sqrt{\frac{2l+1}{2}} \frac{1}{2^l (l+\mu)!} (1+x)^{\mu} \frac{d^{l+\mu}}{dx^{l+\mu}} [(x+1)^{l-\mu} (x-1)^{l+\mu}] \quad (6)$$

in Frage. Diese lassen sich jedoch nicht nach den  $P_l(x)$  entwickeln; denn sie verschwinden alle für  $x = -1$ . Es ist auch nicht möglich, das Feld bei einem Radius  $r_0$  abzuschneiden und für  $r > r_0$  nach den  $P_l(x)$  zu entwickeln; denn die Randbedingung an der Stelle  $r = r_0$  kann dann nicht erfüllt werden. Infolgedessen kann man nicht verlangen, dass die Lösung die Form (5) haben solle; denn (5) ist stets nach den  $P_l(\cos \theta)$  entwickelbar. Physikalisch hängt diese Schwierigkeit mit der Quantelung der Magnetpole zusammen, die ihrerseits damit zusammenhängt, dass durch die Überlagerung

des elektrischen und des magnetischen Feldes ein quantisiertes Impulsmoment um die Verbindungsrichtung der beiden Teilchen entsteht (s. FIERZ, l. c.).

Aus demselben Grunde können wir auch nicht im Sinne einer Bornschen Näherung das magnetische Feld als eine Störung behandeln. Denn die Eigenfunktionen hängen nicht stetig von der Polstärke  $p$  ab.

Gleichwohl können wir mit Hilfe eines Ansatzes der Form (4) zum Ziel gelangen, wenn wir bemerken, dass die Konstanten  $C_l$  in (4) auch durch folgende Bedingungen eindeutig festgelegt sind:

1. Die Funktionen  $\psi$  sollen im  $\tilde{k}$ -Raum normiert sein, wobei  $\tilde{k}$  die Wellenzahl des einfallenden Teilchens bedeutet.

2. Für  $r \rightarrow \infty$  soll die Summe der einlaufenden Wellen sich als Funktion von  $\theta$  wie  $\delta(1 - \cos \theta)$  verhalten, wobei  $\delta$  die Diracsche singuläre Funktion bedeutet.

Indem wir die bekannte asymptotische Entwicklung der Bessel-Funktionen verwenden, setzen wir für unsere Lösung ( $r \rightarrow \infty$ ) gemäss (3)

$$\psi \sim -\frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{1}{\varrho} \sum_l C_l Y_l [e^{i(\varrho - \frac{1}{2}L\pi)} - e^{-i(\varrho - \frac{1}{2}L\pi)}].$$

Hier haben wir, abkürzend,  $Y_l$  für  ${}^u Y_{l, -\mu}$  geschrieben; weiter ist  $\varrho = kr$  und  $L + \frac{1}{2} = \sqrt{(l + \frac{1}{2})^2 - \mu^2}$ . Setzt man

$$\psi = u_0 + u,$$

so soll  $u_0$  die Gesamtheit der einlaufenden,  $u$  die auslaufenden Wellen enthalten. Wir berechnen nun die  $C_l$  mit Hilfe unserer Forderungen 1 und 2:

Da die  $Y_l$  auf 1 normiert sind, folgt aus:

$$\sum_l |C_l| Y_l = \delta(1 - \cos \theta)$$

mit Hilfe von (5):

$$|C_l| = \int_0^{2\pi} \delta(1 - \cos \theta) Y_l(\cos \theta) \sin \theta d\theta = Y_l(1) = \sqrt{\frac{2l+1}{2}}.$$

Die Phase von  $C_l$  wird zu:

$$\text{Arg } C_l = -\frac{1}{2} L \pi$$

so dass unser Ansatz die Form annimmt:

$$\psi = \frac{K}{\sqrt{2}\varrho} \sum_{l=\mu}^{\infty} \sqrt{2l+1} e^{-\frac{1}{2}iL\pi} Y_l J_{L+\frac{1}{2}}(\varrho).$$



Die Konstante  $K$  ist durch die Normierung bestimmt. Sie lässt sich aber leichter auf andere Weise bestimmen. Sie ist ein Mass für die Intensität des einfallenden Stromes und hängt infolgedessen nur von einer beliebig kleinen Umgebung von  $\theta = 0$  ab. Wir bestimmen zunächst in (6) die beiden ersten Terme der Entwicklung nach  $(x-1) = v$ :

$${}^{\mu}Y_{l,-\mu} = \sqrt{\frac{2l+1}{2}} \frac{1}{2^l (l+\mu)!} (v+2)^{\mu} \frac{d^{l+\mu}}{dx^{l+\mu}} [(v+2)^{l-\mu} v^{l+\mu}].$$

Die eckige Klammer lässt sich schreiben

$$2^{l-\mu} v^{l+\mu} + 2^{l-\mu-1} (l-\mu) v^{l+\mu+1} + \dots$$

woraus:

$${}^{\mu}Y_{l,-\mu} = \sqrt{\frac{2}{2l+1}} \left[ 1 + \frac{1}{2} l v + \dots \right].$$

In erster Annäherung verhalten sich alle  ${}^{\mu}Y_{l,-\mu}$  mit verschiedenen  $\mu$  gleich. Deshalb ist die Konstante  $K$  überall dieselbe. Für  $\mu = 0$  ist aber  $\psi$  die ungestörte ebene Welle

$$e^{ikr \cos \theta} = \sum_{l=0}^{\infty} (2l+1) i^l \sqrt{\frac{\pi}{2kr}} J_{l+\frac{1}{2}}(kr) P_l(\cos \theta) \quad (7)$$

wobei für die unnormierten  $P_l$  gilt

$${}^0Y_{l,0} = \sqrt{\frac{2l+1}{2}} P_l.$$

Darum wählen wir für  $K$ :

$$K = \sqrt{2\pi}.$$

Unser Ansatz wird endlich:

$$\psi = \sqrt{\frac{\pi}{\varrho}} \sum_{l=\mu}^{\infty} \sqrt{2l+1} e^{-\frac{1}{2} i L \pi} {}^{\mu}Y_{l,-\mu} J_{L+\frac{1}{2}}(\varrho)$$

und die auslaufende Welle:

$$u = -\frac{1}{\varrho} e^{i\varrho} \sum_{l=\mu}^{\infty} \sqrt{\frac{2l+1}{2}} e^{-i L \pi} {}^{\mu}Y_{l,-\mu}. \quad (8)$$

Für  $\mu = 0$  ist  $e^{-i L \pi} = (-1)^l$ . Da weiter

$${}^0Y_{l,0}(-x) = (-1)^l {}^0Y_{l,0}(x)$$

ist die auslaufende Welle asymptotisch  $\sim \delta(\pi - \theta)$ , was zu erwarten war: es gibt keine Streuwelle.

Die  $\theta$ -Abhängigkeit der auslaufenden Welle gemäss (8) ist unübersichtlich. Die Diskussion des Streuvorganges mit Hilfe der klassischen Mechanik (s. u.) zeigt aber, dass die Streuung im wesentlichen durch die Rutherfordsche Streuformel dargestellt wird. So liegt daher nahe, die auslaufende Welle mit einer Rutherfordschen Streuwelle

$$\psi = \frac{\text{const.}}{r(1+x)}$$

zu vergleichen. Wir entwickeln letztere nach den  $Y_l$  und beschränken uns auf ganzzahlige  $\mu$ .

$$\frac{1}{x+1} = \sum_l c_l Y_l$$

$$c_l = \sqrt{\frac{2l+1}{2}} \frac{1}{2^l (l+\mu)!} \int_{-1}^{+1} (1+x)^{\mu-1} \frac{d^{l+\mu}}{dx^{l+\mu}} [(x+1)^{l-\mu} (x-1)^{l+\mu}] dx \quad (9)$$

$(\mu-1)$ -fache partielle Integration ergibt:

$$c_l = \sqrt{\frac{2l+1}{2}} \frac{(-1)^{\mu-1} (\mu-1)!}{2^l (l+\mu)!} \frac{d^l}{dx^l} [(x+1)^{l-\mu} (x-1)^{l+\mu}] \Big|_{-1}^{+1}.$$

Dieser Ausdruck verschwindet an der oberen Grenze. Für die untere Grenze schreiben wir ( $v = x+1$ ):

$$c_l = \left\{ \text{const.} \frac{d^l}{dv^l} [v^{l-\mu} (v-2)^{l+\mu}] \right\}_{v=0} = (-1)^{l+\mu} \sqrt{\frac{2l+1}{2}} \frac{1}{\mu}$$

so dass die auslaufende Welle  $u$  sich schreiben lässt:

$$u = \frac{\mu}{\varrho} e^{i\varphi} \frac{1}{x+1} - i \sqrt{2} \sum_{l=\mu}^{\infty} \sqrt{2l+1} e^{-\frac{1}{2}i(l+L)\pi} \sin \frac{1}{2}(l-L)\pi \cdot Y_l. \quad (10)$$

Für grosse  $l$  ist:

$$L = \sqrt{\left(l + \frac{1}{2}\right)^2 - \mu^2} - \frac{1}{2} \sim \left(l + \frac{1}{2}\right) - \frac{1}{2} \frac{\mu^2}{l + \frac{1}{2}} - \frac{1}{2}$$

und deshalb

$$\sin \frac{1}{2}(l-L)\pi \sim \frac{\mu^2}{2(2l+1)}.$$

Daraus ist ersichtlich, dass bei der Summe in (10) nur die kleinen  $l$

eine Rolle spielen, denn die Faktoren der  $Y_l$  nehmen ab wie  $\frac{1}{\sqrt{l}}$  \*). Die Streuung ist also auch im wellenmechanischen Falle, ausser bei grossen Streuwinkeln, eine Rutherford-Streuung.

Dieses Ergebnis kann man besser verstehen, wenn man das Problem nach der klassischen Mechanik untersucht. Man zeigt dort leicht, dass die Partikel im Coulomb-Magnetfeld sich auf den geodätischen Linien eines raumfesten Kegels bewegen. Der Öffnungswinkel  $\vartheta$  des Kegels ist durch

$$\cos \vartheta = - \frac{p}{\sqrt{b^2 v^2 + p^2}}$$

gegeben, wobei  $p$  die Polstärke,  $b$  den Minimalabstand des Teilchens zum Mittelpunkt und  $v$  die konstante Geschwindigkeit darstellen<sup>3) 4)</sup>.

Wir suchen die Durchstosspunkte der Bahn mit einer grossen Kugel vor und nach der Streuung. Der feste Kegel sei längs der Bahnnormalen  $S$  aufgeschnitten (Fig.). Asymptotisch verhält sich die Bahn wie die zu ihr parallele Kegelerzeugende. Aus der Figur entnimmt man die folgenden Beziehungen:

$$\alpha = \frac{1}{2} \pi - n \gamma$$

$$\gamma = 2 \pi \sin \vartheta = \frac{2 \pi b v}{\sqrt{b^2 v^2 + p^2}}.$$

Auf dem Kegel gemessen ist der Winkel dieser zwei Erzeugenden:

$$2 \alpha = \left[ 1 - \frac{4 n b v}{\sqrt{b^2 v^2 + p^2}} \right].$$

Daraus errechnet man leicht mit Hilfe der sphärischen Trigonometrie, dass für den Ablenkungswinkel  $\omega$ :

$$\cos \omega = - \frac{p^2 + b^2 v^2 \cos \frac{\pi \sqrt{b^2 v^2 + p^2}}{b v}}{p^2 + b^2 v^2} \quad (11)$$

gilt.

\*) Man kann mit Hilfe der DARBOUXschen Methode (Journ. math. pures et appl. série 3, Bd. 4, S. 5—56) zeigen, dass für grosse  $l$  die  ${}^\mu Y_{l, -\mu}$  sich wie

$$\sqrt{\frac{2l+1}{\pi(l+\mu) \sin \theta}} \cos \left[ \left( l + \frac{1}{2} \right) \theta - \frac{\pi}{4} \right]$$

verhalten. Die hierzu notwendige erzeugende Funktion bekommt man nach POLYA-SZEGÖ, Aufgaben und Lehrsätze aus der Analysis, Bd. I, S. 127. Die  ${}^\mu Y_{l, -\mu}$  lassen sich, bis auf einen Faktor  $(1+x)^\mu$ , als Jacobische Polynome darstellen deren erzeugende Funktion l. c. (S. 303) angegeben ist.

Wir betrachten nun einen homogenen Teilchenstrom, der durch die Ebene  $z = \infty$  in der  $-z$ -Richtung fortschreitet. Es sei in dieser Ebene  $b$  der Abstand des Durchstosspunktes der  $z$ -Achse vom betrachteten Teilchen (Stossparameter). Die Ablenkung eines Teilchens mit Stossparameter  $b$  ist durch die Formel (11) gegeben, denn wegen des Drehimpulssatzes sind Stossparameter und Mini-

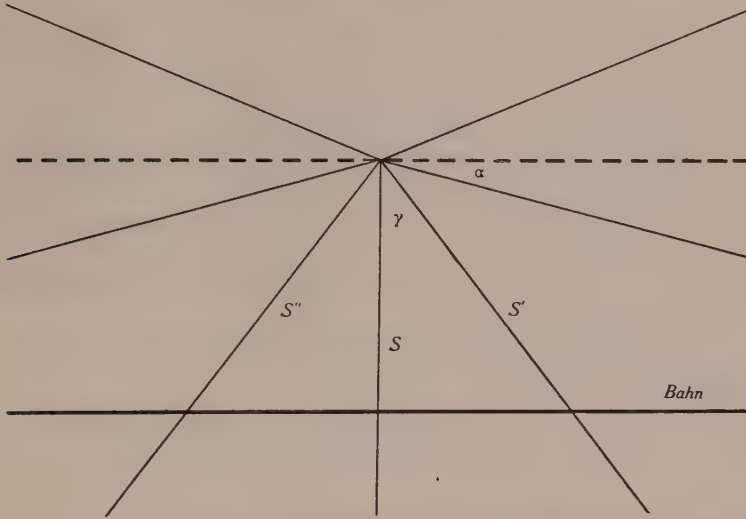


Fig. 1.

Die  $S$  sind die Bilder derselben Erzeugenden.  $S$  ist senkrecht zur Bahn. Im Raum ist asymptotisch die gestrichelte Erzeugende parallel zur Bahn.

malabstand des Teilchens vom Mittelpunkt einander gleich. Für grosse  $b$ -Werte ist angenähert:

$$\frac{\sqrt{b^2 v^2 + p^2}}{b v} \sim 1 \quad \text{und} \quad \cos \omega \sim -\frac{p^2 - b^2 v^2}{p^2 + b^2 v^2}.$$

Bei der Rutherfordschen Streuung gilt bekanntlich:

$$\operatorname{ctg} \frac{1}{2} \omega = b v^2$$

wenn Masse und Ladung gleich 1 gesetzt werden;  $v$  bedeutet die Geschwindigkeit für  $r = \infty$ . Diese letzte Formel lässt sich auch schreiben:

$$\cos \omega = -\frac{1 - b^2 v^4}{1 + b^2 v^4}.$$

Also verhalten sich für kleine Ablenkungswinkel ( $\cos \omega \sim 1$ ),  $v = 1$  und  $p = 1$  magnetische und elektrische Streuzentren gleich.



Man sieht jetzt die Bedeutung der einzelnen Terme in (10). Für kleine Streuwinkel ( $\theta \sim \pi$ , d.h.  $\omega \sim 0$ ) hat man ziemlich genau Rutherfordsche Streuung, der erste Term überwiegt. Die Konvergenz der Reihe (9) ist schlecht, weil die  $Y_l$  für  $\theta = \pi$  verschwinden; deshalb werden die  $c_l$  gross. Für grosse Streuwinkel ist klassisch der Faktor  $\cos \frac{\pi \sqrt{b^2 v^2 + p^2}}{b v}$  wesentlich: für  $b \rightarrow 0$  schwankt  $\cos \omega$  unendlich oft zwischen  $-\frac{p^2 - b^2 v^2}{p^2 + b^2 v^2}$  und  $-1$ . Diese Abweichungen der Rutherford-Streuung werden durch den zweiten Summanden in (10) beschrieben, für diesen Teil sind die  $Y_l$  mit kleinem  $l$ , d.h. die Teilchen mit kleinem Drehimpuls (resp. mit kleinem Stossparameter) massgebend. Es ist aber klar, dass für diesen Teil die Wellenmechanik etwas anderes liefern wird als die „geometrische Optik“, denn in der Nähe des Mittelpunktes sind die Bahnen stark gekrümmt. Wir werden jetzt untersuchen, wie genau die klassische Mechanik in diesem Fall die wellenmechanische Lösung wiedergibt.

Die allgemeine Methode (W.K.B.-Verfahren) ist folgende<sup>5)</sup>: man mache den Ansatz:

$$\psi = e^{\frac{i}{\hbar} S}$$

und entwickle  $S$  nach Potenzen von  $\frac{\hbar}{i}$ :

$$S = S_0 + \frac{\hbar}{i} S_1 + \dots$$

Es gilt dann für  $S$  die Hamilton-Jacobische partielle Differentialgleichung der Mechanik. Die Gleichung für  $S_1$  erweist sich als Kontinuitätsgleichung für die Dichte  $\varrho = e^{2S_1}$ . In dieser Näherung verhalten sich die Wellenpakete genau wie eine Gesamtheit von Massenpunkten, die sich auf den klassischen Bahnen bewegen.

Die Näherung ist dann gut, wenn in allgemeinen Koordinaten<sup>5)</sup> gilt:

$$g^{\kappa\lambda} \left( -\frac{\partial S}{\partial q_\lambda} + A_\lambda \right) \left( -\frac{\partial S}{\partial q_\kappa} + A_\kappa \right) \gg \frac{\hbar}{D} \frac{\partial}{\partial q_\kappa} D g^{\kappa\lambda} \left( -\frac{\partial S}{\partial q_\lambda} + A_\lambda \right). \quad (12)$$

Das Linienelement hat die Form

$$ds^2 = g_{\kappa\lambda} dq_\kappa dq_\lambda,$$

die  $g^{\kappa\lambda}$  bilden die zu  $(g_{\kappa\lambda})$  reziproke Matrix und  $D$  ist  $\sqrt{|g_{\kappa\lambda}|}$ . Die Relation (12) bedeutet, dass  $S_{n+1}$  klein gegen  $S_n$  wird.

Die  $\frac{\partial S}{\partial q_k}$  lassen sich aus den bekannten Integralen bestimmen zu:

$$P_v = \frac{\partial S}{\partial r} = m v \sqrt{1 - \frac{b^2}{r^2}}$$

$$P_\theta = \frac{\partial S}{\partial \theta} = \sqrt{m^2 b^2 v^2 - p^2 \frac{1 - \cos \theta}{1 + \cos \theta}}$$

$$P_\varphi = \frac{\partial S}{\partial \varphi} = 0.$$

Diese Funktionen setzen wir in (12') ein. Nach entsprechenden Kürzungen erhält man:

$$\begin{aligned} m^2 v^2 + p^2 \left[ \frac{\cos \theta}{1 + \cos \theta} \right]^2 &\gg \\ &\gg h \left\{ m v \frac{2 - \frac{b^2}{r^2}}{\sqrt{r^2 - b^2}} + \frac{p^2 - (m^2 b^2 v^2 + p^2) \cos \theta}{\sqrt{m^2 b^2 v^2 \sin^2 \theta - p^2 (1 - \cos \theta)^2}} \right\}. \end{aligned}$$

Die Darstellung ist offenbar schlecht, wenn  $r = b$ , das heisst, wenn das Teilchen möglichst nahe am Zentrum ist, und wenn:

$$m^2 b^2 v^2 \sin^2 \theta - p^2 (1 - \cos \theta)^2 = 0,$$

d. h.

$$\cos \theta = 1 \quad \text{und} \quad \cos \theta = \frac{p^2 - m^2 b^2 v^2}{p^2 + m^2 b^2 v^2}.$$

Diese letzte Bedingung sagt aus, dass die Näherung an den Stellen schlecht ist, wo  $\omega(b)$  ein Extremum hat. Für diese  $\theta$ -Werte ist für grosse  $r$  die Ablenkung gerade die doppelte Kegelöffnung  $\vartheta$ . Dass dort die Näherung schlecht sein muss, ist leicht einzusehen: der differentielle Streuquerschnitt  $d\Phi$  ist proportional  $\frac{db}{d\omega}$ , wobei über alle Zweige des mehrdeutigen  $b(\omega)$  zu summieren ist. Wenn  $\omega(b)$  ein Maximum hat, so hört ein Zweig auf beizutragen, und  $d\Phi$  als Funktion von  $b$  hat eine Ecke, so dass Beugungserscheinungen auftreten. Es ist jedoch zu sagen, dass die Stellen, wo (12) nicht erfüllt ist, wegen der Quadratwurzel schmal sind. Das von der klassischen Mechanik gegebene Bild ist gut, vor allem für kleine Ablenkungswinkel.

## II. Die Diracsche und die Paulische Gleichung.

Die bisher behandelte Schrödinger-Gleichung ist unrelativistisch. Die entsprechende Lorentzinvariante-Gleichung für das Einkörperproblem wurde von DIRAC aufgestellt. Dort ist die  $\psi$ -Funktion kein Skalar mehr, sondern ein Spinor mit vier Komponenten, das heisst, sie genügt einem bestimmten Transformationsgesetz bei Lorentz-Transformationen, insbesondere bei Drehungen. Im letzteren Fall transformieren sich die Komponenten paarweise unter sich. Bei nicht allzugrossen Geschwindigkeiten ist ein Paar gross gegen das andere. Man kann deshalb, bei Vernachlässigung von Termen mit höheren Potenzen der Lichtgeschwindigkeit im Nenner, aus der Diracschen Gleichung die Paulische Gleichung ableiten; letztere ist nur noch eine Beziehung zwischen den zwei grossen Spinorkomponenten.

Wir betrachten wieder ein magnetisches Coulomb-Feld, wobei das Zentrum im Ursprung liegt, und beschreiben es durch das Vektorpotential (1). Die Symmetrie des wellenmechanischen Problems wurde von FIERZ<sup>3)</sup> untersucht. Obwohl nämlich das Feld drehinvariant ist, ist es das Vektorpotential nicht: übt man eine Drehung aus, so addiert sich zum Vektorpotential ein Gradient. Entsprechend wird die Eigenfunktion mit einem Phasenfaktor multipliziert, der bei der Bildung aller messbaren Grössen herausfällt. Die Hamiltonfunktion ist daher invariant gegen Drehung und anschliessende Umeichung. Entsprechend treten in den Operatoren der infinitesimalen Drehungen  $d_i$  zu  $\mu$  proportionale Zusätze auf, die der zur infinitesimalen Drehung gehörigen infinitesimalen Umeichung entsprechen (FIERZ, l. c.).

Die  $d_i$  erfüllen unter sich die bekannten Vertauschungsrelationen:

$$d_x d_y - d_y d_x = i d_z, \dots$$

Die  ${}^\mu Y_{l,m}$  bilden die zu den  $d_i$  gehörige Darstellung der Drehgruppe. Insbesondere folgt, dass wir die  $Y$  so auf 1 normieren können, dass

$$\begin{aligned} (d_x + i d_y) {}^\mu Y_{l,m} &= \sqrt{(l-m)(l+m+1)} {}^\mu Y_{l,m+1} \\ (d_x - i d_y) {}^\mu Y_{l,m} &= \sqrt{(l+m)(l-m+1)} {}^\mu Y_{l,m-1} \\ d_z {}^\mu Y_{l,m} &= m {}^\mu Y_{l,m}.^*) \end{aligned} \quad (14)$$

Die Diracsche  $\psi$ -Funktion ist in unserem Fall auch eine Darstellung der Drehgruppe<sup>6)</sup> mit den  $d_i$  als Operatoren des Dreh-

\*) Die der Gleichung (13) zugrundegelegte Normierung der  ${}^\mu Y_{l,m}$  entspricht derjenigen bei VAN DER WAERDEN<sup>6)</sup>.

impulses. Die allgemeine Darstellungstheorie gibt uns die Mittel, einen Ansatz für  $\psi$  zu finden, so dass die partielle Differentialgleichung auf eine gewöhnliche Differentialgleichung in  $r$  zurückgeführt wird.

Jedes Komponentenpaar der  $\psi$ -Funktion bildet eine halbzahlige Darstellung der Drehgruppe. Wir können deshalb sofort den Winkelteil der Eigenfunktionen angeben.

Das Gesamtimpulsmoment  $j$  setzt sich aus dem räumlichen Teil  $l$ , den wir schon in der nichtrelativistischen Theorie hatten (er besteht aus Bahnimpuls und Feldimpuls), und aus dem Spin zusammen. Zu einem gegebenen  $j$  gibt es zwei Arten von Darstellungen, je nachdem der Spin parallel oder antiparallel zum räumlichen Impulsmoment steht. Nach VAN DER WAERDEN<sup>7)</sup> sind die winkelabhängigen Bestandteile der Eigenfunktionen:

$$\begin{aligned} W_{m+\frac{1}{2}, l}^j &= \frac{1}{\sqrt{2l+1}} \begin{pmatrix} -\sqrt{l-m} & Y_{l, m} \\ \sqrt{l+m+1} & Y_{l, m+1} \end{pmatrix} = W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} \\ W_{m-\frac{1}{2}, l-1}^j &= \frac{1}{\sqrt{2l+1}} \begin{pmatrix} \sqrt{l+m} & Y_{l-1, m} \\ \sqrt{l-m-1} & Y_{l-1, m+1} \end{pmatrix} = W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} \end{aligned} \quad (15)$$

und als Ansatz werden wir eine lineare Kombination beider  $W^j$  mit Funktionen von  $r$  als Faktoren wählen.

Nun schreiben wir die vollständige Diracsche Gleichung auf. Sie lautet (für negativ geladene Teilchen):

$$\sum_{\mu=1}^4 \gamma^{\mu} \left( \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x^{\mu}} - \frac{e}{c} \Phi_{\mu} \right) \Psi - imc \Psi + \frac{M}{c} \sum_{\mu} \sum_{\nu} F_{\mu\nu} \gamma^{\mu} \gamma^{\nu} \Psi = 0.$$

Es ist  $x^4 = ict$ . Die  $\gamma^{\mu}$  sind vierreihige Matrizen, die den Relationen:

$$\gamma^{\mu} \gamma^{\nu} + \gamma^{\nu} \gamma^{\mu} = 2 \delta_{\mu\nu}$$

genügen. Das Glied mit  $M$  beschreibt ein für das Teilchen charakteristisches zusätzliches magnetisches Moment; dieses ist Null für Elektronen.  $\Phi_{1,2,3}$  ist das Vektorpotential,  $1/i \Phi_4$  das skalare Potential des Feldes  $F_{\mu\nu}$ . Es gilt also:

$$F_{\mu\nu} = \frac{\partial \Phi_{\nu}}{\partial x^{\mu}} - \frac{\partial \Phi_{\mu}}{\partial x^{\nu}}, \quad F_{\mu\nu} = -F_{\nu\mu}.$$

In unserem Falle sind ( $p$  = Polstärke):

$$\Phi_1 = -\frac{py}{r(r+z)}, \quad \Phi_2 = \frac{px}{r(r+z)}, \quad \Phi_3 = \Phi_4 = 0$$

$$\mathfrak{H}_1 = F_{23} = \frac{px}{r^3}, \quad \mathfrak{H}_2 = F_{31} = \frac{py}{r^3}, \quad \mathfrak{H}_3 = F_{12} = \frac{pz}{r^3}, \quad F_{i4} = 0.$$



Man macht wie üblich den Ansatz:

$$\Psi = \psi e^{-\frac{iE}{\hbar}t} = \psi e^{-\frac{E}{\hbar c}x^4}$$

wo  $\psi = \psi(x, y, z)$  von  $t$  nicht abhängt.  $\psi$  genügt sodann der Gleichung:

$$i \left( \frac{E}{c} \gamma^4 - mc \right) \psi + \sum_{\mu=1}^3 \gamma^\mu \left( \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x^\mu} - \frac{e}{c} \Phi_\mu \right) \psi + \frac{M}{c} \sum_\mu \sum_\nu F_{\mu\nu} \gamma^\mu \gamma^\nu \psi = 0.$$

Wir wählen für die  $\gamma^\mu$  die Darstellung:

$$\gamma^\mu = -i \begin{pmatrix} 0 & \sigma_\mu \\ -\sigma_\mu & 0 \end{pmatrix} \quad \mu = 1, 2, 3. \quad \gamma^4 = \begin{pmatrix} I & 0 \\ 0 & -I \end{pmatrix}$$

wobei  $I$  die Einheitsmatrix und die  $\sigma_\mu$  die gewöhnlichen Pauli-Matrizen:

$$\sigma_1 = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_2 = \begin{pmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{pmatrix} \quad \sigma_3 = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix}$$

bedeuten, die die Relationen

$$\sigma_\mu^2 = I, \quad \sigma_i \sigma_j = -\sigma_j \sigma_i = i \sigma_k \quad (i, j, k \text{ zyklisch}) \quad (16)$$

erfüllen. Daraus folgt weiter

$$\gamma^\mu \gamma^\nu = - \begin{pmatrix} \sigma_\mu \sigma_\nu & 0 \\ 0 & \sigma_\mu \sigma_\nu \end{pmatrix} = -i \begin{pmatrix} \sigma_\varrho & 0 \\ 0 & \sigma_\varrho \end{pmatrix} \\ (\mu, \nu, \varrho = 1, 2, 3; \mu, \nu, \varrho \text{ zyklisch}).$$

Wir setzen nun:

$$\psi = \begin{pmatrix} \psi^s \\ \psi^a \end{pmatrix}$$

wobei  $\psi^s$  und  $\psi^a$  selbst zwei Komponenten haben. Dann gilt:

$$+ \left( \frac{E}{c} - mc \right) \psi^s - \sum_{\mu=1}^3 \sigma_\mu \left( \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x^\mu} - \frac{e}{c} \Phi_\mu \right) \psi^a - \frac{2M}{c} \sum_{\mu=1}^3 \sigma_\mu \mathfrak{H}_\mu \psi^s = 0 \\ + \left( \frac{E}{c} + mc \right) \psi^a - \sum_{\mu=1}^3 \sigma_\mu \left( \frac{\hbar}{i} \frac{\partial}{\partial x^\mu} - \frac{e}{c} \Phi_\mu \right) \psi^s + \frac{2M}{c} \sum_{\mu=1}^3 \sigma_\mu \mathfrak{H}_\mu \psi^a = 0. \quad (17)$$

Bei Spiegelungen ist  $\psi^s$  symmetrisch und  $\psi^a$  antisymmetrisch. Wir führen jetzt Polarkoordinaten ein. Dabei gilt für den Spinvektor:

$$\sigma_1 \sin \theta \cos \varphi + \sigma_2 \sin \theta \sin \varphi + \sigma_3 \cos \theta = \sigma_r = \varepsilon \\ \sigma_1 \cos \theta \cos \varphi + \sigma_2 \cos \theta \sin \varphi - \sigma_3 \sin \theta = \sigma_\theta \quad (18) \\ -\sigma_1 \sin \varphi + \sigma_2 \cos \varphi = \sigma_\varphi$$

Die Vertauschungsrelationen (16) werden:

$$\sigma_r \sigma_\theta = i \sigma_\varphi, \quad \sigma_\theta \sigma_\varphi = i \sigma_r, \quad \sigma_\varphi \sigma_r = i \sigma_\theta, \quad \sigma_r^2 = \sigma_\theta^2 = \sigma_\varphi^2 = 1. \quad (19)$$

Mit  $\varepsilon$  multipliziert nehmen die Gleichungen (17) die folgende Gestalt an:

$$\varepsilon \left( \frac{E}{c} - mc \right) \psi^s - \frac{\hbar}{i} \left[ \frac{\partial}{\partial r} + \frac{i \sigma_\varphi}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} - \frac{i \sigma_\theta}{r \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} - \frac{\mu \sigma_\theta}{r} \frac{1 - \cos \theta}{\sin \theta} \right] \psi^a + \frac{2Mp}{cr^2} \psi^s = 0 \quad (20)$$

$$\varepsilon \left( \frac{E}{c} + mc \right) \psi^a - \frac{\hbar}{i} \left[ \frac{\partial}{\partial r} + \frac{i \sigma_\varphi}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} - \frac{i \sigma_\theta}{r \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} - \frac{\mu \sigma_\theta}{r} \frac{1 - \cos \theta}{\sin \theta} \right] \psi^s - \frac{2Mp}{cr^2} \psi^a = 0.$$

Beachten wir, dass die Drehimpulsoperatoren sich schreiben lassen:

$$d_x = i \sin \varphi \frac{\partial}{\partial \theta} + i \operatorname{ctg} \theta \cos \varphi \frac{\partial}{\partial \varphi} - \mu \frac{1 - \cos \theta}{\sin \theta} \cos \varphi$$

$$d_y = -i \cos \varphi \frac{\partial}{\partial \theta} + i \operatorname{ctg} \theta \sin \varphi \frac{\partial}{\partial \varphi} - \mu \frac{1 - \cos \theta}{\sin \theta} \sin \varphi$$

$$d_z = -i \frac{\partial}{\partial \varphi} - \mu,$$

so zeigt eine leichte Rechnung mit Hilfe von (18) und (19), dass:

$$(\tilde{\sigma}, \tilde{d}) = -i \sigma_\varphi \frac{\partial}{\partial \theta} + \frac{i \sigma_\theta}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \varphi} + \frac{\mu \sigma_\theta}{\sin \theta} (1 - \cos \theta) - \mu \sigma_r.$$

Damit wird die Gleichung (20):

$$\begin{aligned} \varepsilon \left( \frac{E}{c} - mc \right) \psi^s - \frac{\hbar}{i} \left[ \frac{\partial}{\partial r} - \frac{(\tilde{\sigma}, d) + \mu \varepsilon}{r} \right] \psi^a + \frac{2Mp}{cr^2} \psi^s &= 0 \\ \varepsilon \left( \frac{E}{c} + mc \right) \psi^a - \frac{\hbar}{i} \left[ \frac{\partial}{\partial r} - \frac{(\tilde{\sigma}, d) + \mu \varepsilon}{r} \right] \psi^s - \frac{2Mp}{cr^2} \psi^a &= 0. \end{aligned} \quad (21)$$

Wir müssen nur noch wissen, wie die einzelnen Operatoren auf die  $W^j$  wirken.

$\varepsilon$  ist ein Skalar; denn es ist das Produkt des symbolischen Vektors  $\tilde{\sigma}$  mit dem Einheitsvektor. Die  $W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^j$  und die  $W_{m+\frac{1}{2}, l}^j$  bilden zusammen ein vollständiges System: jedes Funktionenpaar lässt sich nach den  $W^j$  entwickeln. Das Produkt  $\varepsilon W^j$  transformiert

sich wie  $W^j$  selbst, seine Entwicklung enthält also nur die beiden  $W^j$ . Es muss demnach gelten:

$$\begin{aligned}\varepsilon W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} &= a W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} + b W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} \\ \varepsilon W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} &= c W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} + d W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}}.\end{aligned}\quad (22)$$

Die Koeffizienten hängen von  $m$  und von  $\theta$  nicht ab. Wir bestimmen sie deshalb aus speziellen Werten der  $W$ , indem wir  $m = l-1$ ,  $\varphi = 0$  und  $\cos \theta = 0$  (daher  $\varepsilon = \sigma_1$ ) setzen.

Nun ist ( $x = \cos \theta$ )

$$\begin{aligned}{}^\mu Y_{l, l} &= \frac{1}{2^l} \sqrt{\frac{2l+1}{2} \frac{(2l)!}{(l+\mu)!(l-\mu)!}} (1+x)^{\frac{l-\mu}{2}} (1-x)^{\frac{l+\mu}{2}} \\ {}^\mu Y_{l, l-1} &= \frac{1}{2^{l-1}} \sqrt{\frac{2l+1}{2} \frac{(2l-1)!}{(l+\mu)!(l-\mu)!}} \frac{l+x+\mu}{1-x^2} (1+x)^{\frac{l-\mu}{2}} (1-x)^{\frac{l+\mu}{2}}.\end{aligned}$$

Woraus mit

$$\begin{aligned}B &= \frac{1}{2^l} \sqrt{\frac{2l+1}{2} \frac{(2l)!}{(l+\mu)!(l-\mu)!}} \\ {}^\mu Y_{l, l}(0) &= B \quad {}^\mu Y_{l-1, l}(0) = 0 \\ {}^\mu Y_{l, l-1}(0) &= -\mu \sqrt{\frac{2}{l}} B \quad {}^\mu Y_{l-1, l-1}(0) = \sqrt{\frac{2}{2l+1} \frac{(l+\mu)(l-\mu)}{l}} B\end{aligned}$$

Durch Einsetzen in (23) bekommt man

$$\begin{aligned}a &= \frac{\mu}{l} & b &= \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} \\ c &= \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} & d &= -\frac{\mu}{l}.\end{aligned}$$

$(\vec{\sigma}, \vec{d})$  lässt sich mit Hilfe der Drehimpulsrelationen angeben:

$$\left(\vec{d} + \frac{1}{2} \vec{\sigma}\right)^2 = j(j+1) = l^2 - \frac{1}{4} = \vec{d}^2 + (\vec{d}, \vec{\sigma}) + \frac{3}{4}.$$

Also ist

$$(\vec{d}, \vec{\sigma}) = l^2 - 1 - d^2.$$

\*) Die  ${}^\mu Y_{l, m}$  gehören zum Spiegelungscharakter  $(-1)^{l+\mu}$ , und die  $W_{l, m}^{l \pm \frac{1}{2}}$  daher auch. Der Pseudoskalar  $\mu$  kehrt bei Spiegelungen sein Vorzeichen ebenfalls um. Man kann deshalb nicht, wie bei der Lösung der Diracschen Gleichung eines Elektrons im elektrischen Coulomb-Feld:

$$\varepsilon W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} = k W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}}$$

schliessen, weil  $\varepsilon$  schiefsymmetrisch ist, sondern nur

$$\varepsilon W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} = k W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} + \mu k' W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}},$$

wo  $k$  und  $k'$  gewöhnliche Konstanten sind.

Es gilt

$$\begin{aligned}\vec{d}^2 W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} &= l(l-1) W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} \\ \vec{d}^2 W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} &= l(l+1) W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}}.\end{aligned}$$

Somit ist

$$\begin{aligned}(\vec{\sigma}, \vec{d}) W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} &= -(l+1) W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} \\ (\vec{\sigma}, \vec{d}) W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} &= (l-1) W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}}.\end{aligned}$$

$\psi^s$  und  $\psi^a$  sind Darstellungen der Drehgruppe; der allgemeinste Ansatz ist deshalb nach dem bisherigen:

$$\begin{aligned}\psi^s &= f_1(r) W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} + f_2(r) W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}} \\ \psi^a &= f_3(r) W_{m+\frac{1}{2}, l}^{l-\frac{1}{2}} + f_4(r) W_{m+\frac{1}{2}, l-1}^{l-\frac{1}{2}}.\end{aligned}$$

Diesen setzen wir in die Diracsche Gleichung (21) ein und bringen in jeder Gleichung den Faktor der verschiedenen  $W$  zum Verschwinden. Das bedeutet, dass der symmetrische und der schiefsymmetrische Teil der Gleichung getrennt verschwindet. Das gibt:

$$\begin{aligned}\frac{h}{i} f_1' &= \left( \frac{E}{c} + mc \right) \left( \frac{\mu}{l} f_3 + \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_4 \right) \\ &\quad - \frac{h}{ir} \left[ \left( l + 1 - \frac{\mu^2}{l} \right) f_1 - \mu \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_2 \right] - \frac{2Mp}{cr^2} f_3 \\ \frac{h}{i} f_2' &= \left( \frac{E}{c} - mc \right) \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_3 - \frac{\mu}{l} f_4 \right) \\ &\quad - \frac{h}{ir} \left[ -\mu \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_1 - \left( l - 1 - \frac{\mu^2}{l} \right) f_2 \right] - \frac{2Mp}{cr^2} f_4 \quad (24) \\ \frac{h}{i} f_3' &= \left( \frac{E}{c} - mc \right) \left( \frac{\mu}{l} f_1 + \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_2 \right) \\ &\quad - \frac{h}{ir} \left[ \left( l + 1 - \frac{\mu^2}{l} \right) f_3 - \mu \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_4 \right] + \frac{2Mp}{cr^2} f_1 \\ \frac{h}{i} f_4' &= \left( \frac{E}{c} + mc \right) \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_1 - \frac{\mu}{l} f_2 \right) \\ &\quad - \frac{h}{ir} \left[ -\mu \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_3 - \left( l - 1 - \frac{\mu^2}{l} \right) f_4 \right] + \frac{2Mp}{cr^2} f_2.\end{aligned}$$

Das System (24) hat, wegen der Terme proportional  $M$ , für  $r = 0$  eine starke Singularität. Es lässt sich leicht zeigen, dass, falls  $M \neq 0$  ist, es keine Lösungen der Form:

$$f_i = r^{\alpha_i} \sum_{\nu=0}^{\infty} a_{\nu}^{(i)} r^{\nu}$$

gibt. Die  $f_i$  sind daher in diesem Falle nicht quadratintegrierbar. Das Glied mit  $M$  entspricht im unrelativistischen Grenzfall einem



(winkelabhängigen) Potential; d.h. es ist formell  $E$  durch  $E - \frac{2 M \mu}{r^2}$  ersetzt. Das Teilchen besitzt ein zusätzliches Dipolmoment und wird vom Zentrum mit einer Kraft proportional  $1/r^3$  angezogen resp. weggestossen, je nach der Richtung dieses Momentes. Dann ist aber kein stationärer Zustand mehr möglich; denn im Falle der Anziehung fällt das Teilchen in das Zentrum hinein.

Stationäre Zustände gibt es demnach nur für  $M = 0$ . Dies kann man als einen Grund betrachten, warum es keine magnetischen Teilchen gibt. Denn in Wirklichkeit ist für Protonen  $M \neq 0$ ; diese haben ein Moment von 2,7 Kernmagnetonen. Sie könnten also nicht in „stabiler“ Wechselwirkung sein mit den singulären Magnetpolen.

Für  $M = 0$  findet sich aber leicht ein Ansatz. Die beiden Gleichungen (21) unterscheiden sich nur im konstanten Faktor  $E/c \pm mc$ . Es liegt nahe

$$\psi^s = A \psi^a \quad \text{d. h.} \quad \begin{pmatrix} f_1 \\ f_2 \end{pmatrix} = A \begin{pmatrix} f_3 \\ f_4 \end{pmatrix}$$

zu setzen; für

$$A = \sqrt{\frac{E + mc^2}{E - mc^2}}$$

gilt

$$\left( E' = \frac{E^2 - m^2 c^4}{\hbar^2 c^2} \right)$$

$$f_1' = i \sqrt{E'} \left( \frac{\mu}{l} f_1 + \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_2 \right) - \frac{l+1 - \frac{\mu^2}{l}}{r} f_1 + \frac{\mu}{r} \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_2$$

$$f_2' = i \sqrt{E'} \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_1 - \frac{\mu}{l} f_2 \right) + \frac{\mu}{r} \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} f_1 + \frac{l-1 - \frac{\mu^2}{l}}{r} f_2$$

sowie dasselbe System für  $f_3$  und  $f_4$ .

Das System lässt sich durch die Transformation:

$$\begin{aligned} f_1 &= \mu g_1 + \frac{1}{2l} g_2 \\ f_2 &= l \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} - 1 \right) g_1 + \frac{1}{2\mu} \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} + 1 \right) g_2 \end{aligned} \quad (25)$$

vereinfachen. Es gilt:

$$\begin{aligned} g_1' &= -\frac{1}{r} (\sqrt{l^2 - \mu^2} + 1) g_1 + \frac{1}{2\mu^2} i \sqrt{E'} \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} \right) g_2 \\ g_2' &= -2 i \sqrt{E'} l^2 \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} \right) g_1 + \frac{1}{r} (\sqrt{l^2 - \mu^2} - 1) g_2 \end{aligned} \quad (26)$$

woraus nach kurzer Rechnung:

$$\begin{aligned} g_1'' - \frac{2}{r} g_1' + \left[ E' - \frac{l^2 - \mu^2 + \sqrt{l^2 - \mu^2}}{r} \right] g_1 &= 0 \\ g_2'' - \frac{2}{r} g_2' + \left[ E' - \frac{l^2 - \mu^2 - \sqrt{l^2 - \mu^2}}{r} \right] g_2 &= 0. \end{aligned}$$

Die  $g_i$  sind im wesentlichen Bessel-Funktionen:

$$\begin{aligned} g_1 &= \frac{1}{\sqrt{\varrho}} J_{\sqrt{l^2 - \mu^2 + \sqrt{l^2 - \mu^2} + 1/4}}(\varrho) \\ g_2 &= \frac{1}{\sqrt{\varrho}} J_{\sqrt{l^2 - \mu^2 - \sqrt{l^2 - \mu^2} + 1/4}}(\varrho) \end{aligned}$$

wo  $\varrho = \sqrt{E'} r$ .

Demnach ist die Lösung der Diracschen Gleichung:

$$\begin{aligned} \psi^s &= \left[ \mu J_{\sqrt{\lambda_1 + 1/4}}(\varrho) + \frac{1}{2l} J_{\sqrt{\lambda_2 + 1/4}}(\varrho) \right] W_l \\ &+ \left[ l \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} - 1 \right) J_{\sqrt{\lambda_1 + 1/4}}(\varrho) + \frac{1}{2\mu} \left( \sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}} + 1 \right) J_{\sqrt{\lambda_2 + 1/4}}(\varrho) \right] W_{l-1} \end{aligned} \quad (27)$$

wobei

$$\lambda_{1,2} = l^2 - \mu^2 \pm \sqrt{l^2 - \mu^2}$$

und die  $W_l$  durch (15) gegeben sind.

(Die zweite Lösung bekommt man durch Vertauschen von  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  und Ändern des Vorzeichens von  $\sqrt{1 - \frac{\mu^2}{l^2}}$ ).

Weiter ist

$$\psi^a = \sqrt{\frac{E - mc^2}{E + mc^2}} \psi^s.$$

Die eigentümliche Form der Lösung versteht man besser, wenn man die iterierte Diracsche Gleichung<sup>8)</sup> löst. Diese zerfällt in zwei identische Systeme\*) für  $\psi^s$  und  $\psi^a$ ; denn sie lautet:

$$\sum_{\nu=1}^3 \left[ \frac{\partial}{\partial x^\nu} + \frac{ie}{\hbar c} \Phi_\nu \right]^2 \psi + \frac{1}{2} \sum_{\mu} \sum_{\nu} \frac{e}{i\hbar c} \gamma^\mu \gamma^\nu F_{\mu\nu} \psi + E' \psi = 0.$$

Sie lässt sich separieren durch

$$\psi = R(r) \Theta(\theta, \varphi)$$

\*) In Abwesenheit eines elektrischen Feldes zerfällt die Diracsche Gleichung immer in zwei identische Gleichungen mit zwei Komponenten. Dann sind die Diracsche Gleichung und die Paulische Gleichung einander gleich. Man vergleiche z. B. die Gleichungen (7.10) S. 303 und (8.5) S. 305 im Artikel von H. BETHE Handbuch der Physik, XXIV.

und  $\lambda_{1,2}$  ist dann der Eigenwert der Winkelgleichung. Für  $R$  bekommt man die Funktionen  $g_i$ , und  $\Theta$  ist eine lineare Kombination der  $W$ , so dass in etwas anderer Form wieder die Lösungen (27) herauskommen. Was die iterierte Gleichung nicht liefern kann, ist der Faktor  $\frac{\psi^s}{\psi^a}$ .

Herzlichen Dank schulde ich Herrn Prof. M. FIERZ, unter dessen Leitung die vorliegende Arbeit entstanden ist.

Basel, Seminar für theoretische Physik.

### Literatur.

- <sup>1)</sup> P. A. M. DIRAC, Proc. Roy. Soc. London **133**, 60 (1931).
  - <sup>2)</sup> J. TAMM, Zs. f. Phys. **71**, 141 (1931).
  - <sup>3)</sup> M. FIERZ, Helv. Phys. Acta XVII, 27 (1944).
  - <sup>4)</sup> H. POINCARÉ, C.R. **123**, 530 (1896<sub>2</sub>).
  - <sup>5)</sup> W. PAULI, Handb. d. Phys. XXIV<sub>1</sub>, 166—169.
  - <sup>6)</sup> Die allgemeine Darstellungstheorie der Drehgruppe findet sich z. B. in B. L. VAN DER WAERDEN, Gruppentheoretische Methode in der Quantenmechanik, Springer (1932).
  - <sup>7)</sup> Ebenda S. 70 und S. 100.
  - <sup>8)</sup> W. PAULI, l. c. S. 232, Gl. III; für den Zusatz S. 233.
-

# Elastische Untersuchungen an $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ und $\text{KH}_2\text{PO}_4$

von B. Zwicker.

(20. VIII. 1946.)

*Zusammenfassung.* Die Methode von SCHÄFER und BERGMANN, die elastischen Konstanten aus der Beugung von Licht an schwingenden Festkörpern zu bestimmen, wurde ausgebaut zur Untersuchung des elastischen Verhaltens von Kristallen bis zu Temperaturen des flüssigen Stickstoffs (ca.  $-195^\circ\text{C}$ ).

Speziell untersucht wurden die gezüchteten Kristalle von  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  und dem seignette-elektrischen  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ . Es ergibt sich, dass sich  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  völlig normal verhält bis zu seinem Umwandlungspunkt, im Gegensatz zu  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ , bei dem zwei elastische Konstanten  $c_{66}$  und  $c_{12}$  ein sehr rasches Absinken auf einen Sechstel des ursprünglichen Wertes in einem engen Temperaturgebiet am Curiepunkt aufweisen. Es scheint, dass diese zwei Konstanten in einer besonderen, durch das Gitter bedingten Beziehung zueinander stehen, denn sie sind einander für alle gemessenen Temperaturen entgegengesetzt gleich.

Für beide Kristalle werden alle elastischen Konstanten  $c_{ik}$  als Funktion der Temperatur angegeben und bei  $+20^\circ\text{C}$  ausserdem die Elastizitätsmoduln  $s_{ik}$  und die Kompressibilitäten berechnet und mit vorhandenen Messungen anderer Autoren verglichen. Die Schlussfolgerungen bezüglich der Kristallgitterenergie liefern Ergebnisse, die mit der Theorie von SLATER in Einklang stehen.

## I. Einleitung.

Im Verlaufe der letzten Jahre erschienen zahlreiche Arbeiten, die sich mit dem Problem der Seignetteelektrizität befassten und namentlich die Messung der verschiedenen physikalischen Grössen, wie z. B. spezifische Wärme, Dielektrizitätskonstante (DK), piezoelektrische und optische Konstanten und deren Temperaturverlauf zum Thema hatten. Auch über die Messung der elastischen Eigenschaften von Seignettesalz und  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  liegen verschiedene Arbeiten vor. Doch können sie nicht voll befriedigen, da einesteils bei Seignettesalz<sup>1)2)</sup> die Resultate, die mit verschiedenen Messmethoden erhalten wurden, keineswegs übereinstimmen und andererseits bei  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ <sup>3)</sup> nicht die explizite Bestimmung aller Elastizitätsmoduln gelang.

Ziel dieser Arbeit war es nun, die elastischen Konstanten von  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  und  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  zu messen und ihre Temperaturabhängigkeit zu ermitteln.



Die Elastizitätsmoduln auf statischem Wege zu bestimmen mag wohl gehen für die Messungen bei Zimmertemperatur, doch treten bei tiefen Temperaturen (bis mindestens  $-150^{\circ}\text{C}$ ) so grosse Schwierigkeiten auf, dass diese Methode nicht in Frage kommt.

Da das Kaliumphosphat piezoelektrisch ist, können durch Messung der Resonanzfrequenzen von Platten und Stäben bestimmter Orientierungen alle Elastizitätsmoduln dieses Kristalls bestimmt werden, doch versagt diese Methode in der Nähe des Curiepunktes zufolge des enormen Anstieges der DK und des Piezomoduls. Ausserdem haftet der erwähnten Methode noch der Nachteil an, dass sorgfältig auf die Randbedingungen geachtet werden muss, da z. B. für den isolierten und den mit Elektroden beklebten Kristall wesentlich andere Werte gemessen werden. Diese Art der Messung ist kürzlich in unserem Institut für  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  ausgeführt worden<sup>4)</sup>. Die Resultate werden für uns zum Vergleich wertvoll sein<sup>\*)</sup>.

Wir haben zur Methode von BERGMANN und SCHÄFER<sup>5) 7)</sup> gegriffen, die aus der Beugung von Licht an Ultraschallwellen in einem Kristallwürfel die elastischen Konstanten des entsprechenden Kristalls berechnen. Um unsere Aufgabe zu lösen, wurde die Methode für Messungen bei tiefen Temperaturen weiter entwickelt. Im folgenden fassen wir die theoretischen Grundlagen der Methode kurz zusammen.

## II. Theorie.

Die theoretische Erklärung der von SCHÄFER und BERGMANN beobachteten Beugungsfiguren an schwingenden Festkörpern stammt von E. FUES und H. LUDLOFF<sup>6)</sup>. Sie bildet zugleich die Grundlage zur Berechnung der elastischen Konstanten aus den gemessenen Beugungswinkeln. Die wesentlichen experimentellen Feststellungen sind die folgenden: Wird ein durchsichtiger Kristallwürfel auf irgend eine Weise zu hochfrequenten mechanischen Schwingungen angeregt, so wird Licht, das den Kristall durchsetzt, gebeugt. Die Beugungsfigur ist in ihrer Form unabhängig von der Umrandung und den Anregungsbedingungen des Kristallwürfels. Sie besteht aus vielen Einzelpunkten, die zu ganzen Kurven aneinander gereiht sind. Die Anregungsfrequenz entspricht etwa der 200. Oberschwingung des Würfels, d. h. die elastischen Wellenlängen sind von der Grössenordnung  $5 \cdot 10^{-3}$  cm. Im Einklang damit stehen auch die sehr kleinen Beugungswinkel von nur etwa  $10'$  ( $\sim 10^{-2}$ ).

<sup>\*)</sup> Auf die eben erst erschienene Arbeit von W. P. MASON, Phys. Rev. **69**, 173 (1946), wird in einer späteren Arbeit näher eingegangen werden.

Zur Erklärung der Interferenzfigur stehen alle diejenigen Eigenschwingungen zur Verfügung, die mit der erregenden Frequenz mehr oder weniger gut in Resonanz stehen. Die Verteilung der Energie auf die verschiedenen Schwingungen hängt weitgehend von experimentellen, schwer kontrollierbaren Bedingungen ab. Da die Gestalt der Interferenzkurven von der Kristallbegrenzung unabhängig ist, benutzen FUES und LUDLOFF zur formalen Beschreibung der Eigenschwingungen eine Überlagerung ebener Wellen. Uns interessiert nur die Form der Kurven, die von den Randbedingungen unabhängig ist, und damit sind wir das im allgemeinen so komplizierende Randwertproblem los. Man betrachtet den Kristall als unendlich gross und berechnet die ebenen elastischen Wellen, die einer gegebenen Erregerfrequenz  $\omega$  entsprechen.

Um die möglichen ebenen Wellen in einem Kristall auszurechnen, betrachtet man zwei benachbarte Punkte  $P$  und  $P'$ ; die zugehörigen Verschiebungsvektoren seien  $\tilde{S}(\xi_1, \xi_2, \xi_3)$  und  $\tilde{S} + (d\vec{r} \text{ grad}) \tilde{S}$ . Die mechanischen Spannungen  $\sigma_{\alpha\beta}$  und die elastischen Deformationen sind im allgemeinsten Falle durch 21 verschiedene elastische Konstanten  $c_{\alpha\beta\alpha'\beta'}$  verknüpft:

$$\sigma_{\alpha\beta} = \sum_{\alpha'\beta'} c_{\alpha\beta\alpha'\beta'} \varepsilon_{\alpha'\beta'} \quad (\alpha, \beta, \alpha', \beta' = 1, 2, 3)$$

$$\varepsilon_{\alpha\beta} = \text{Verzerrungstensor}$$

wobei

$$c_{\alpha\beta\alpha'\beta'} = c_{\beta\alpha\alpha'\beta'} = c_{\alpha\beta\beta'\alpha'} = c_{\beta\alpha\beta'\alpha'} = c_{\alpha'\beta'\alpha\beta}.$$

Die Kraftdichte  $\tilde{F}$  wird dann

$$F_\alpha = \sum_{\beta\alpha'\beta'} c_{\alpha\beta\alpha'\beta'} \frac{\partial^2 \xi_{\alpha'}}{\partial x_\beta \partial x_{\beta'}}$$

und damit die Bewegungsgleichungen ( $\rho$  = Dichte):

$$\rho \cdot \frac{\partial^2 \xi_\alpha}{\partial t^2} = \sum_{\beta\alpha'\beta'} c_{\alpha\beta\alpha'\beta'} \frac{\partial^2 \xi_{\alpha'}}{\partial x_\beta \partial x_{\beta'}}.$$

Als Lösung wird eine ebene Welle angesetzt

$$\tilde{S} = \tilde{S}_0 \cdot e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega \cdot t)}.$$

Die Komponenten des Amplitudenvektors müssen den 3 linearen homogenen Gleichungen genügen:

$$\sum (-\rho \omega^2 \delta_{\alpha\alpha'} + c_{\alpha\beta\alpha'\beta'} k_\beta k_{\beta'}), \xi_\alpha^0 = 0 \quad (1)$$

wobei

$$\delta_{\alpha\alpha'} = 1 \text{ für } \alpha = \alpha'$$

$$\delta_{\alpha\alpha'} = 0 \text{ für } \alpha \neq \alpha'.$$

Damit das Problem eine Lösung hat, also der Verschiebungsvektor  $\tilde{S} \equiv 0$  ist, muss die symmetrische Koeffizientendeterminante der 3 Gleichungen (1) verschwinden.

$$D(\omega, \varrho, c_{\alpha\beta\alpha'\beta'}, k_\alpha) = 0. \quad (2)$$

Diese Forderung liefert uns die sog. Form-Frequenz-Beziehung. Man kann sie sich veranschaulicht denken durch die sog. Form-Frequenz-Fläche im  $k$ -Raum. Sie ist eine Fläche 6. Grades mit 3 Mänteln, denn wie durch Einführen der Richtungskosinus des  $k$ -Vektors leicht ersichtlich ist, laufen im Kristall in jeder Rich-

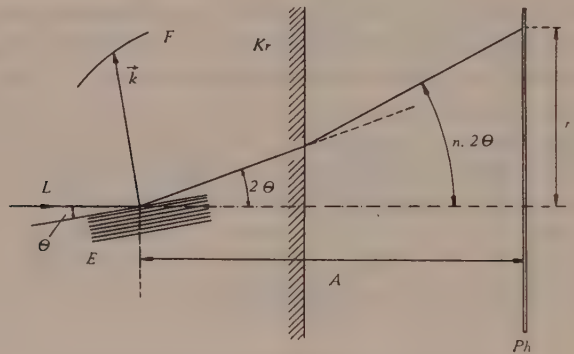


Fig. 1.

*L*: Einfallendes Licht; *E*: elast. Wellenzug; *Kr*: Kristall; *Ph*: Photoplatte;  
*F*: Formfrequenzfläche.

tung bei gegebener Frequenz  $\omega$  drei Wellen, deren Amplitudenvektoren  $\tilde{S}$  paarweise aufeinander senkrecht stehen. Im Gegensatz zum isotropen Medium sind diese Wellen meistens weder rein longitudinal ( $\vec{k} \parallel \tilde{S}$ ) noch rein transversal ( $\vec{k} \perp \tilde{S}$ ).

Es muss nun untersucht werden, welchen Beitrag zum Interferenzbild jede dieser ebenen Wellen liefert. Die longitudinale Schwingungskomponente schafft eine schichtförmige harmonische Verteilung des Streuvermögens mit dem Schichtabstand  $\Delta = \frac{2\pi}{k}$  und damit entsteht nach der BRAGGSchen Beziehung Beugung:

$$2 \cdot \Delta \sin \Theta = \lambda_i.$$

Wegen der Kleinheit der Beugungswinkel tragen nur jene ebenen Wellen zum Interferenzbild bei, deren Ausbreitungsvektor  $k$  senk-

recht zum einfallenden Licht steht. Wie aus Fig. 1 sofort ersichtlich ist, ergibt sich:

$$r = A \cdot n \cdot 2 \Theta = \frac{A \cdot n \cdot \lambda_i}{A} = A \cdot \lambda_a \cdot \frac{k}{2\pi}. \quad (3)$$

Die beobachtete Beugungsfigur ist also ähnlich dem ebenen Schnitt der Formfrequenzfläche, wenn die Schnittebene durch das Symmetriezentrum der Fläche gelegt wird und senkrecht zum einfallenden Licht steht. Die Werte der Elastizitätskonstanten  $c_{\alpha\beta\alpha'\beta'}$  lassen sich demnach finden durch Vergleich der experimentell gefundenen Kurvenform mit den Gleichungen der berechneten Kurven.

*Spezialfall von  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  und  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ .*

Im folgenden soll jetzt diese Rechnung für den speziellen Fall unserer Kristalle angewendet werden. Die elastischen Konstanten  $c_{\alpha\beta\alpha'\beta'}$  hängen auf folgende Weise mit den allgemein gebräuchlichen Voigtschen Elastizitätskonstanten  $c_{ik}$  (bekanntlich durch

$X_k = \sum_{i=1}^6 c_{ik} x_i$  definiert) zusammen:

$\alpha$ $\alpha'$	$\beta$ $\beta'$	$i$ $k$
1	1	1
2	1	6
3	1	5
2	2	2
3	2	4
3	3	3

also z. B.  $c_{3211} = c_{14}$ .

Wenn wir jetzt die Gleichung der Formfrequenzfläche für  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  berechnen, so sind wir uns bewusst, dass wir einen gewissen Fehler begehen, wenn wir nicht die exakten Gleichungen für piezoelektrische Kristalle

$$\begin{aligned} X &= c \cdot x + f \cdot P \\ E &= f \cdot x + \chi \cdot P \end{aligned} \quad (4)$$

(Die Indizes sind bei diesen total 9 Gleichungen der Einfachheit halber weggelassen.)

benützen, sondern einfach für die Rechnung annehmen, dass die Polarisation  $P = 0$  ist, ohne uns überzeugt zu haben, ob das auch wirklich im Experiment der Fall sei. Doch werden wir später auf diesen Punkt zurückkommen.



Für den Fall des  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  und  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ , die tetragonal (Hemiedrie mit Spiegelachse) kristallisieren, reduziert sich das Schema der elastischen Konstanten wie folgt:

$$\begin{array}{cccccc} c_{11} & c_{12} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{13} & 0 & 0 & 0 \\ c_{13} & c_{13} & c_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{66} \end{array}$$

Unter diesen Bedingungen wird die Gleichung der Formfrequenzfläche für diese Kristalle:

$$\begin{aligned} & + (k_1^6 + k_2^6) (c_{11}c_{44}c_{66}) + k_3^6 (c_{33}c_{44}^2) \\ & + k_1^2 k_2^2 (k_1^2 + k_2^2) [c_{44} (c_{11}^2 + c_{11}c_{66} - c_{12}^2 - 2c_{12}c_{66})] \\ & + k_3^2 (k_1^4 + k_2^4) (c_{11}c_{33}c_{66} + c_{11}c_{44}^2 - c_{66}c_{13}^2 - 2c_{13}c_{44}c_{66}) \\ & + k_3^4 (k_1^2 + k_2^2) [c_{44} (c_{11}c_{33} + c_{33}c_{66} - c_{13}^2 - 2c_{13}c_{44})] \\ & + k_1^2 k_2^2 k_3^2 (c_{11}^2c_{33} + c_{33}c_{66}^2 + c_{11}c_{44}^2 + 2c_{13}^2c_{12} + 2c_{13}^2c_{66} - c_{13}^2c_{11} \\ & \quad + 4c_{12}c_{13}c_{44} + 4c_{13}c_{44}c_{66} - 2c_{11}c_{13}c_{44} + 2c_{12}c_{44}^2 + 4c_{44}^2c_{66}) \\ & - \varrho \omega^2 (k_1^4 + k_2^4) (c_{11}c_{44} + c_{11}c_{66} + c_{44}c_{66}) \\ & - \varrho \omega^2 k_3^4 (2c_{33}c_{44} - c_{44}^2) \\ & + \varrho \omega^2 k_1^2 k_2^2 (-c_{11}^2 + c_{12}^2 - 2c_{11}c_{44} + 2c_{12}c_{66} - 2c_{44}c_{66}) \\ & + \varrho \omega^2 k_3^2 (k_1^2 + k_2^2) (c_{13}^2 + 2c_{13}c_{44} - c_{44}^2 - c_{11}c_{33} - c_{33}c_{66} - c_{44}c_{66} - c_{11}c_{44}) \\ & + \varrho^2 \omega^4 (k_1^2 + k_2^2) (c_{11} + c_{44} + c_{66}) \\ & + \varrho^2 \omega^4 k_3^2 (c_{33} + 2c_{44}) \quad - \varrho^3 \omega^6 = 0 \end{aligned} \quad (5)$$

$\omega$  bedeutet die Anregungsfrequenz und  $k_1, k_2, k_3$  sind die Komponenten des Wellenvektors im System der kristallographischen Achsen  $a, b$  und  $c$ .

Untersucht man die ebenen Schnitte dieser Fläche senkrecht zu den Achsen  $a$  und  $c$  ( $a$  und  $b$  sind gleichwertig), so ergibt sich folgendes Bild.

### 1. Licht parallel $c$ -Achse.

Man erhält die Gleichung der Beugungsfigur für diesen Fall durch Nullsetzen von  $k_3$ . Man bemerkt dann aber, dass die Kurve 6. Grades zerfällt in einen Kreis

$$c_{44} (k_1^2 + k_2^2) - \varrho \omega^2 = 0$$

und eine Kurve 4. Grades, die dieselben Symmetrieeigenschaften besitzt, wie der Kristall selbst.

$$\begin{aligned} & (k_1^4 + k_2^4) c_{11}c_{66} + k_1^2 k_2^2 (c_{11}^2 - c_{12}^2 - 2c_{12}c_{66}) - (k_1^2 + k_2^2) \varrho \omega^2 (c_{11} + c_{66}) \\ & + \varrho^2 \omega^4 = 0. \end{aligned} \quad (6)$$

Die Beugungsfigur, die dem Kreis entsprechen würde, kann aber nicht auftreten, denn es handelt sich hier um eine reine Schubwelle (Einsetzen der Lösung in die Gleichungen (1) ergibt  $\xi_1^0 = \xi_2^0 = 0$ ,  $\xi_3^0 \neq 0$ ), deren Verschiebungs- oder Amplitudenvektor immer parallel zum einfallenden Licht steht und damit keine Beugung geben kann. Bei den anderen, der Gleichung 4. Grades entsprechenden Wellen liegt der Amplitudenvektor immer senkrecht zum Licht, d. h. diese Wellen tragen alle zur Beugungsfigur bei, auch wenn es sich in bestimmten Richtungen um reine Transversalwellen handelt<sup>7)</sup>.

Für die Bestimmung der  $c_{ik}$  wählen wir am vorteilhaftesten die Achsenabschnitte der Beugungsfigur auf den kristallographischen Achsen und auf ihren Winkelhalbierenden. Wir erhalten für sie unter Berücksichtigung der Gleichung (3) ( $\nu$  = Anregungsfrequenz =  $\omega/2\pi$ ) auf  $a$ -Achse

$$r_{a1} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{1}{c_{11}}}$$

und

$$r_{a2} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{1}{c_{66}}} \quad (7)$$

auf der Winkelhalbierenden

$$r_{aa1} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{2}{c_{11} - c_{12}}}$$

und

$$r_{aa2} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{2}{c_{11} + c_{12} - 2c_{66}}} \quad (8)$$

oder

$$\frac{r_{aa1}^2 - r_{aa2}^2}{r_{aa1}^2 + r_{aa2}^2} = \frac{c_{12} + c_{66}}{c_{11} + c_{66}}.$$

Aus der Beugungsfigur lassen sich in diesem Fall auf einfache Weise die Konstanten  $c_{11}$ ,  $c_{12}$  und  $c_{66}$  bestimmen.

## 2. Licht parallel $a$ -Achse.

Durch Nullsetzen von  $k_1$  oder  $k_2$ , denn sie sind gleichwertig, gewinnt man die gesuchte Beugungsfigur, die auch diesmal zerfällt, nämlich in eine Ellipse

$$c_{66}k_1^2 + c_{44}k_3^2 - \varrho \omega^2 = 0$$

und eine Kurve 4. Grades:

$$k_1^4 c_{11} c_{44} + k_3^4 c_{33} c_{44} + k_1^2 k_3^2 (c_{11} c_{33} - c_{13}^2 - 2c_{13} c_{44}) - k_1^2 \varrho \omega^2 (c_{11} + c_{44}) - k_3^2 \varrho \omega^2 (c_{33} + c_{44}) - \varrho^2 \omega^4 = 0$$

Durch Ausrechnen der entsprechenden Amplitudenvektoren kommt man auch hier zum Resultat, dass die Ellipse reinen Schubwellen entspricht, die nichts zur Beugung beitragen können.

Die Abschnitte auf den Achsen und ihren Winkelhalbierenden werden hier:

Auf  $a$ -Achse

$$r_{a1} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{1}{c_{11}}}$$

und

$$r_{a2} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{1}{c_{44}}} \quad (9)$$

Auf  $c$ -Achse

$$r_{c1} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{1}{c_{33}}}$$

und

$$r_{c2} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{1}{c_{44}}} \quad (10)$$

Auf den Winkelhalbierenden

$$r_{ac1/2} = \lambda \cdot A \cdot \sqrt{\varrho} \cdot \nu \cdot \sqrt{\frac{(c_{11} + c_{33} + 2c_{44}) \pm \sqrt{(c_{11} - c_{33})^2 + 4(c_{13} + c_{44})^2}}{c_{44}(c_{11} + c_{33} + c_{44}) + c_{11}c_{33} - (c_{13} + c_{44})^2}}$$

oder

$$\frac{r_{ac1}^2 - r_{ac2}^2}{r_{ac1}^2 + r_{ac2}^2} = \frac{\sqrt{(c_{11} - c_{33})^2 + 4(c_{13} + c_{44})^2}}{c_{11} + c_{33} + 2c_{44}}. \quad (11)$$

Man gewinnt also in diesem Fall nochmals  $c_{11}$  und neu die restlichen Konstanten  $c_{33}$ ,  $c_{44}$  und  $c_{13}$ .

Wir haben hier die Möglichkeit, sämtliche elastischen Konstanten von  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  oder  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  aus je zwei Beugungsfiguren zu bestimmen. Diese Methode hat überdies den Vorteil, dass alle Konstanten an demselben Kristallwürfel bestimmt werden können, im Gegensatz zur Resonanzfrequenzmessungsmethode, wo für dieses Kristallsystem mindestens 4 Stäbe und 2 Platten benötigt werden. Die Vorzüge der Methode werden um so grösser, je tiefer die Symmetrie der untersuchten Kristalle ist, da z. B. im triklinen System 3 Beugungsfiguren zur Bestimmung der 21 elastischen Konstanten genügen, die Resonanzmethode der Kompliziertheit der Berechnung der Randbedingungen wegen ausfällt und höchstens noch die experimentell langwierige und sehr schwierige statische Messung der elastischen Konstanten zum Ziel führen würde.

### III. Messapparatur.

#### 1. Thermostat.

Da der Curiepunkt von  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  bei  $-150^\circ\text{C}$  liegt, muss die Temperatur des zu untersuchenden Kristalls von etwa  $-180^\circ\text{C}$  bis Zimmertemperatur stabilisiert werden können. Wir verwendeten deshalb denselben Flüssigkeitskryostaten wie bei der Messung der elektrooptischen Eigenschaften dieser Kristalle<sup>8)</sup>. Die Stabilisierung geschieht mittels einer Toulon-Schaltung, die es gestattet, die Temperatur des Bades zwischen  $95^\circ\text{K}$  und  $300^\circ\text{K}$  etwa eine Stunde lang auf  $0,05^\circ$  konstant zu halten.

#### 2. Messgefäß.

Der obere Cibanitabschluß des Messgefäßes (Fig. 2), das etwa 35 cm lang ist, enthält die beiden Öffnungen für den Ein- und Austritt des Lichtes, verschlossen mit einer planparallelen kleinen

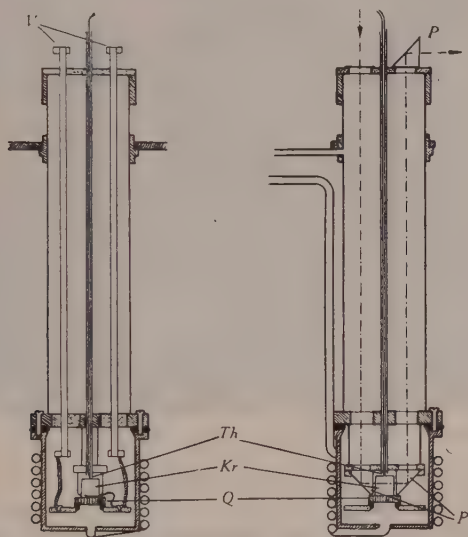


Fig. 2.

Messgefäß.

V: Hochfrequenzspannungszuführungen; Th: Thermolement; Kr: Kristall;  
Q: Schwingquarz; P: Glasprismen.

Glasplatte und einem  $90^\circ$ -Prisma; ferner befinden sich dort die zwei Elektrodenzuführungen für die Hochfrequenzspannung zur Anregung des Schwingquarzes und die Einführung des Thermolementes. Ein 55 mm weites Stahlrohr der Wandstärke 0,5 mm



hält den unteren Teil des Gefäßes mit dem eigentlichen Messraum. Durch ein spiralförmiges Kupferrohr, das unten in die Messkammer mündet, können der Schwingquarz und der Kristall mit getrocknetem Gas ( $N_2$  oder  $H_2$ ) von konstanter Temperatur angeblasen werden. Die Dichtung des Messraumes wird mit einem Bleiring bewerkstelligt.

Die Hochfrequenzspannung wird auf zwei dünnwandigen Neusilberrohren, die 0,05 mm stark versilbert sind, in den Messraum geführt.

Am oberen der beiden Cibanittische sind die zwei Ablenkprismen aufgehängt; der untere trägt den Schwingquarz gelagert auf einem Kupferring (Fig. 3). Die Spannungszuführung auf die obere Fläche

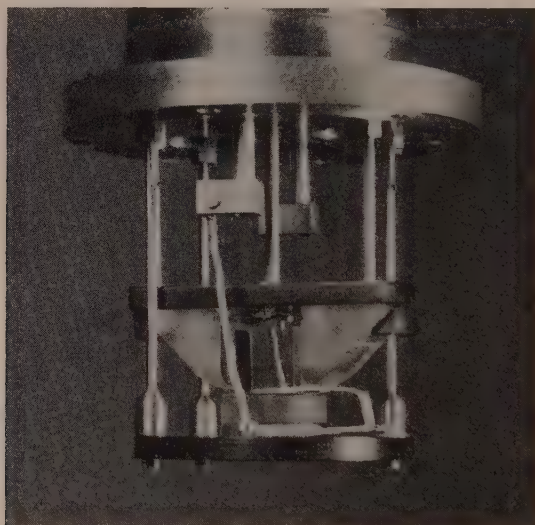


Fig. 3.

Anordnung im Innern des Messraumes.

des Quarzes geschieht auf der versilberten Bronzehaltefeder. Diese beiden Tische sind mit je 3 Stützen am Messingteil der oberen Abschlussplatte des Messraumes befestigt. Durch verschieden starkes Einschrauben dieser Stützen lassen sich die beiden Tische horizontieren und damit auch die Optik des Messgefäßes justieren. Auf dem Schwingquarz, zwischen den beiden Prismen, ruht der zu untersuchende Kristallwürfel. Direkt darüber befindet sich die Lötstelle des Thermoelementes, bestehend aus einem Kupfer- und einem Konstantandraht von 0,01 cm Dicke, isoliert mit einer dünnen

Seidenfadenwicklung. Das Thermoelement ist in einem dünnen Neusilberrohr nach aussen geführt, das zugleich die Abschirmung besorgt.

Die Thermospannung des Thermoelementes wurde mit einem Kompensationsapparat gemessen. Ein empfindliches Galvanometer (ca.  $10^{-9}$  A/mm.m) diene als Nullinstrument. Die absolute Genauigkeit der Temperaturmessung betrug etwa  $\pm 0,5^\circ$ , die relative Genauigkeit mindestens 0,05%.

Damit sich auch nach langem Messen bei tiefen Temperaturen der obere Teil des Messgefässes mit dem Prisma nicht mit Wasser beschlägt, wurde bei der Messung dauernd getrocknete Pressluft darüber geblasen.

### 3. Optische Anordnung.

Die prinzipielle Anordnung ist natürlich dieselbe wie für die Erzeugung von Beugung z. B. an einem Kreuzgitter, doch treten für unseren Fall verschiedene erschwerende Komplikationen auf. Einmal sind die Beugungswinkel so enorm klein, dass wir in unseren Versuchen mit einem Abstand Kristall—Photoplatte von mindestens 400 cm arbeiten mussten. Sollen die einzelnen Kurvenpunkte der Beugungsfigur einen kleineren Durchmesser haben als 1 mm, so bedingt das, dass eine Lichtquelle von weniger als  $10^{-3}$  cm Durchmesser zur Verfügung stehen muss, bei einem abbildenden Objektiv von 4 cm Brennweite. Da einestails durch die vielen Reflexionen an Prismenflächen und Linsen viel Licht, das zudem monochromatisch sein muss, verloren geht und andernteils der Querschnitt des Lichtbündels durch die Grösse der Kristallwürfel beschränkt ist, muss danach getrachtet werden, diesen Mangel durch eine möglichst starke Lichtquelle wieder auszugleichen. Zufolge dieser Bedingungen kamen wir zu folgender optischer Anordnung (Fig. 4):

Als Lichtquelle diene eine wassergekühlte Hochdruckquecksilberdampfampe (*Hg*) mit einer Leuchtdichte von ca. 50 000 HK/cm<sup>2</sup>. Mit einem Kondensor (*Ko*) wird möglichst viel Licht auf eine Blende (*B*<sub>1</sub>) von ca.  $10^{-2}$  cm  $\phi$  gesammelt. Ein Objektiv (*O*<sub>1</sub>) verkleinert diese Blende etwa 10mal, wodurch wir zur genügend kleinen punktförmigen Lichtquelle gelangen, die dann von einem 4 cm Photoobjektiv (*O*<sub>2</sub>) auf die etwa 5 m entfernte Photoplatte abgebildet wird. Ein Lichtfilter (*F*) sorgt dafür, dass mit der grünen *Hg*-Linie (5461 Å) gearbeitet wird. Der Lichtweg vom Messgefäss bis Photoplatte (*Ph*) ist in ein abgewinkeltes Rohr eingeschlossen, um den Streulichtuntergrund klein zu halten. Das

eigentliche Kameragehäuse besitzt eine Blende ( $B_7$ ), um die Beugung nullter Ordnung abzublenden, und einen drehbaren Spiegel ( $Sp_2$ ), der es gestattet, das Beugungsbild auf einer Mattscheibe ( $M$ ) scharf einzustellen und auch während der Belichtung einer Photoplatte dauernd zu kontrollieren.

Die Belichtungszeiten für Beugungsaufnahmen betrugen etwa 20 Min. bis 1 Std., doch gelingt es bei genügender Adaption in der Dunkelheit die Figur direkt auf der Mattscheibe auszumessen. Auf diese Weise können natürlich etwelche Veränderungen der Beugungsfigur und damit der  $c_{ik}$  bei variierender Temperatur viel besser untersucht werden.

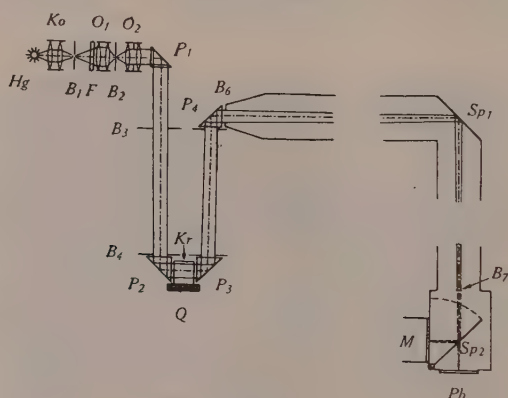


Fig. 4.

Schema der optischen Anordnung.

*Hg*: Hochdruckquecksilberdampfampe; *Ko*: Kondensor; *B<sub>i</sub>*: Blenden; *F*: Grünfilter (5461 Å); *O<sub>i</sub>*: Objektive; *P<sub>i</sub>*: Glasprismen; *Kr*: Kristall; *Q*: Schwingquarz; *Sp<sub>i</sub>*: Spiegel; *M*: Mattscheibe; *Ph*: Photoplatte.

#### 4. Anregung der Kristalle.

Obwohl die untersuchten Kristalle piezoelektrisch sind und damit prinzipiell direkt durch eine elektrische Wechselspannung zu Schwingungen angeregt werden können, musste davon Abstand genommen werden, weil die Verluste relativ hoch und temperaturabhängig sind, und sich damit die Kristalle verschieden stark erwärmen und zwar so stark, dass eine Kühlung mit Luft, um sie auf konstanter Temperatur zu halten, praktisch nicht möglich wäre. Die Kristallwürfel wurden darum indirekt zum Schwingen angeregt, durch Aufsetzen auf einen Quarzdickeenschwinger. Von den zur Verwendung gelangten Quarzen haben sich besonders zwei geeignet, die etwa folgende Daten hatten: Dicke 0,5 bis 0,6 cm,

Durchmesser 2,0 cm, Grundfrequenz ca. 500 kHz. Ihre Silberelektroden haben wir im Vakuum aufgedampft.

Zur elektrischen Anregung wurde ein 400-Watt-Sender gebaut (Fig. 5), dessen Frequenz von 7 MHz bis 25 MHz (durch Verwendung von 3 Spulen) verändert werden kann. Er durfte allerdings nie ganz ausgesteuert werden, um ein Überschlagen am Quarz zu vermeiden. Normalerweise arbeiteten wir immer nahe an der Grenze der Überschlagsspannung des Schwingquarzes, weshalb

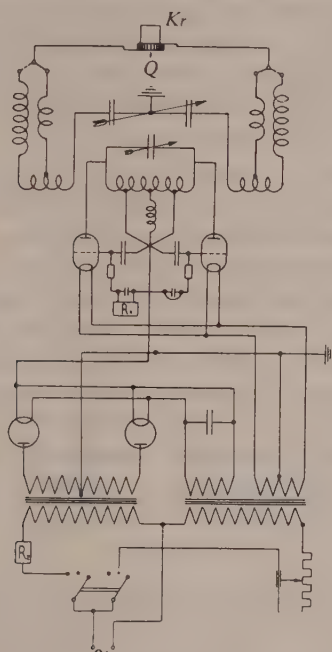


Fig. 5.

Schaltschema des Hochfrequenzgenerators.

$Q$ : Schwingquarz;  $Kr$ : Kristall.

zum Schutze der Senderöhren noch ein Relais eingebaut wurde, das die Anodenspannung ausschaltet bei Anwachsen des Gitterstromes über den zulässigen Höchstwert. Der Hochfrequenzgenerator arbeitet mit zwei Senderöhren, die durch ein Vollweggleichrichteraggregat gespeist werden. Die Zuleitungen zum Schwingquarz werden in ihrer Länge so gewählt, dass eine möglichst hohe Spannung am Kristall liegt. Für die Messung der elastischen Konstanten wurden Anregungsfrequenzen von 18 bis 25 MHz verwendet. Dies entspricht für den Quarz Dickenschwingungen der 37. bis 49. Ordnung. Die Anregungsfrequenzen wurden



mit einem Präzisionswellenmesser gemessen, dessen Eichkurve zu diesem Zwecke beim Eidg.-Amt für Mass und Gewicht kontrolliert wurde\*).

Zur Übertragung der Ultraschallwellen vom Quarz in den Kristallwürfel eignet sich bei Zimmertemperatur am besten die Zwischenschaltung eines kleinen Tropfens Paraffinöl zwischen Quarz und Kristall. Auf die beschriebene Weise kann nur bis ca.  $-95^{\circ}\text{C}$  gemessen werden. Es scheint, dass der Kristall, der unterhalb ca.  $-20^{\circ}\text{C}$  wegen des Erstarrens der dünnen Ölschicht an den Quarz festgekittet ist, zuerst noch gut schwingt, dann aber zufolge der verschiedenen Ausdehnungskoeffizienten oder wegen Polymerisation des Öls abspringt und dadurch den notwendigen engen Kontakt mit dem anregenden Quarz verliert.

Nach vielen Versuchen zeigte es sich, dass zu Untersuchungen bei noch tieferen Temperaturen die Ölschicht am zweckmässigsten durch eine dünne Schicht Propylalkohol (Smp.  $-126,1^{\circ}\text{C}$ , Sdp.  $+96^{\circ}\text{C}$ ) ersetzt wird. Auf diese Weise gelang es den Kristallwürfel innerhalb des ganzen gemessenen Temperaturgebietes bis  $-185^{\circ}\text{C}$  anzuregen. Zu Messzwecken eignet sich diese Methode erst bei Temperaturen tiefer als  $-10^{\circ}$ , da sonst die Propylalkoholschicht bald verdampft. Es wurde darum immer möglichst schnell nach dem Auflegen des Kristallwürfels auf den Quarz das Messgefäss auf  $-20^{\circ}$  vorgekühlt. Praktisch verwendeten wir bei allen Messungen unterhalb des Kohlensäurepunktes Propylalkohol.

### 5. Kristalle.

Die untersuchten  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ - und  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ -Quader wurden aus glasklaren gezüchteten Einkristallen herausgesägt und je zwei gegenüberliegende Flächenpaare auf  $10^{-3}\text{ cm}$  genau planparallel geschliffen. Die Dimensionen der Quader schwankten zwischen 0,75 und 1,35 cm. An die Politur der Flächen, die ja im Strahlengang zwischen Objektiv und Photoplatte liegen, müssen hohe Anforderungen gestellt werden, damit das Bild der 100fach vergrösserten Lichtquelle und damit das Beugungsbild gut werden.

Es gelang uns eine einfache Methode zu finden, Polituren der nötigen Güte herzustellen, die für alle wasserlöslichen Kristalle anwendbar ist. Auf eine feine, plane Mattglasscheibe wird ein kleiner Tropfen Wasser gesetzt und darauf der Kristall analog

---

\*) Der Präzisionswellenmesser wurde uns in freundlicher Weise vom Institut für Hochfrequenztechnik der ETH. zur Verfügung gestellt, was an dieser Stelle bestens verdankt sei.

dem Schleifprozess poliert. Dabei löst sich Kristallsubstanz im Wasser, es bildet sich mit der Zeit eine gesättigte Lösung, dann fällt Kristallsubstanz aus und füllt die kleinen Unebenheiten des mattierten Glases aus. Bei ständigem Weiterreiben trocknet die inzwischen entstandene Paste aus Kristallsubstanz ein, und wenn alles Wasser entwichen ist, hat man die nötige Politur der Kristallfläche erreicht. Auf diese Weise gelingt es, polierte, plane und mit einiger Vorsicht auch parallele Flächenpaare herzustellen. Die verschiedenen Löslichkeiten der Kristalle müssen dadurch ausgeglichen werden, dass der Druck auf den Kristall beim Polieren verändert wird und man eventuell die Glasplatte mit dem Wasser vorwärmt. Alle polierten Flächen wurden jeweils optisch auf ihre Güte kontrolliert.

Es zeigte sich, dass es sehr einfach ist, den Kristallwürfel senkrecht zur Auflagefläche zu starken Schwingungen anzuregen. Fällt diese Richtung mit einer Achsenrichtung des Kristalls zusammen, also hier mit einer Richtung, in der entweder reine Longitudinal- oder reine Transversalwellen auftreten, so ist die Anregung der Schwingungen in anderen Richtungen namentlich für die Schubwellen schlecht. Am besten und vollständigsten wird die Beugungsfigur, wenn in der Anregungsrichtung der Amplitudenvektor mit dem Wellenvektor etwa einen Winkel von  $45^\circ$  einschliesst. Aus diesem Grunde wurden die meisten untersuchten Kristallquader orientiert mit den Kanten entweder  $a$  und den Winkelhalbierenden  $a/c$ , oder  $c$  und den Winkelhalbierenden  $a/a$  parallel.

Leider erwärmen sich sowohl die Quarzplatte als auch der darauf gesetzte Kristall bei längerer Inbetriebnahme erheblich. Wir haben daher entweder die Aufnahmen in Etappen gemacht oder mit der Belichtung gewartet, bis sich das Temperaturgleichgewicht hergestellt hatte, was nach ca. 40 Min. Dauerbetrieb genügend der Fall ist.

#### IV. Messergebnisse und Diskussion.

Unsere Apparatur wurde kontrolliert, indem zuerst an einem Quarzwürfel die Beugungsfiguren ausgemessen wurden. So erhielten wir z. B. für  $c_{33} = 105,0 \cdot 10^{10}$  Dyn/cm<sup>2</sup> gegenüber  $105,4 \cdot 10^{10}$  Dyn/cm<sup>2</sup> <sup>5) 7)</sup>. Auch die anderen Elastizitätskonstanten stimmen gut mit den Literaturwerten überein, womit die Brauchbarkeit unserer Apparatur für die absolute Bestimmung von Elastizitätskonstanten erwiesen ist.

1.  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ .a) Resultate bei  $+20^\circ\text{C}$ .

Da in den Tabellen von LANDOLT und BÖRNSTEIN die Dichtangaben stark streuen und um die  $c$ -Messungen absolut durchführen zu können, bestimmten wir die Dichte der untersuchten Kristalle mit einer Genauigkeit von  $\pm 1\text{‰}$  zu  $1,791\text{ g/cm}^3$  bei  $+16^\circ\text{C}$ , was auch gut in Einklang steht mit den Angaben von JAFFE<sup>9)</sup>.

In Fig. 6 sind zwei Beugungsbilder wiedergegeben, die an  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  mit einer Anregungsfrequenz von  $22,50\text{ MHz}$  bei  $+23,3^\circ\text{C}$  aufgenommen wurden. In der Mitte ist der Schatten der Blende zu sehen, die das Bild der Lichtquelle in der Mitte der Beugungsfigur ausblendet. Die kristallographischen  $a$ - bzw.  $c$ -Achsen sind je  $45^\circ$  zur Horizontalen geneigt. Im Photogramm links ist deutlich die Symmetrie (Gleichwertigkeit der  $a$ - und  $b$ -Achse) des Kristalls sichtbar. Neben den beiden sehr hellen Beugungspunkten auf der Vertikalen treten noch zwei Punkte auf, die der zweiten Ordnung entsprechen.

Die elastischen Konstanten von  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  wurden bei  $+20^\circ\text{C}$  bestimmt zu:

$$c_{11} = (61,7 \pm 0,3) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2$$

$$c_{33} = (32,8 \pm 0,2) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2$$

$$c_{12} = (7,2 \pm 1,4) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2$$

$$c_{13} = (19,4 \pm 1,0) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2$$

$$c_{44} = (8,5 \pm 0,25) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2$$

$$c_{66} = (5,92 \pm 0,06) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2$$

Die relativ grosse Ungenauigkeit in  $c_{12}$  rührt daher, dass bei seiner Berechnung neben den gemessenen Beugungswinkeln noch Summen, Produkte und Differenzen der  $c_{ik}$  eingehen.

Von den beiden Gleichungssystemen

$$\begin{aligned} X &= c \cdot x + f \cdot P \\ E &= f \cdot x + \chi \cdot P \end{aligned} \quad (4)$$

und

$$\begin{aligned} x &= s \cdot X + d \cdot E \\ P &= d \cdot X + \kappa \cdot E \end{aligned} \quad (12)$$

ist natürlich dasjenige, das  $x$  und  $P$  als freie Variablen enthält, messtechnisch weniger praktisch als das zweite. Letzteres enthält

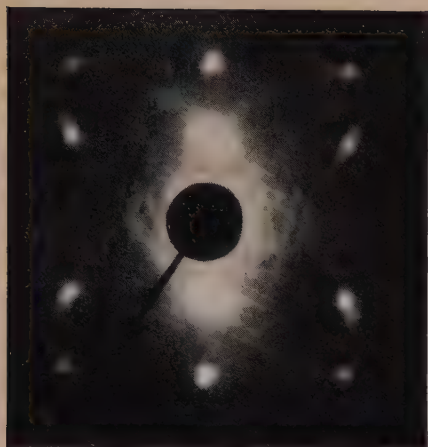


Fig. 6a.

$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ . Beugungsfigur senkrecht zur  $c$ -Achse.

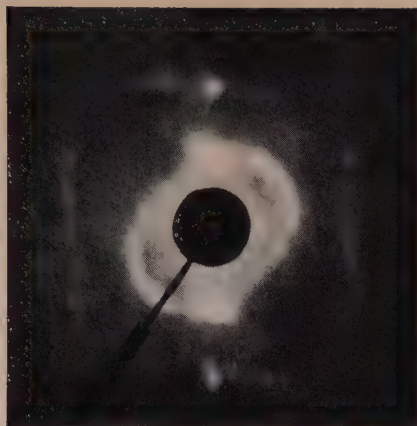


Fig. 6b.

$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ . Beugungsfigur senkrecht zur  $a$ -Achse.

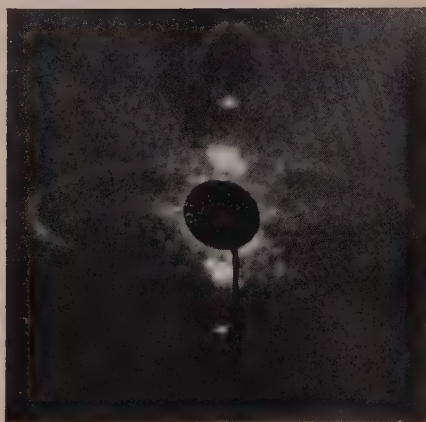
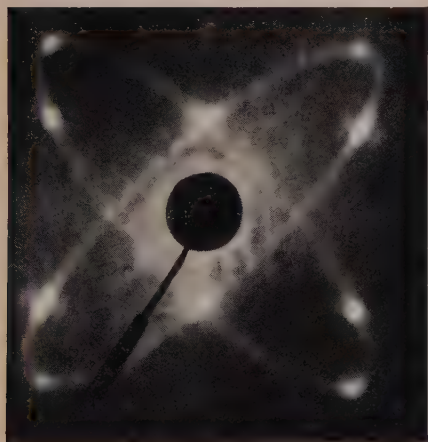


Fig. 9.

$\text{KH}_2\text{PO}_4$ . Beugungsfiguren senkrecht zur  $c$ -Achse.





aber nicht die von uns bestimmten elastischen Konstanten  $c_{ik}$ , sondern die Elastizitätsmoduln  $s_{ik}$ . Bei Kenntnis aller Konstanten des einen Systems lassen sich die des anderen natürlich berechnen. Um unsere Messungen mit denen anderer Autoren, die die  $s_{ik}$  gemessen haben, vergleichen zu können, haben wir diese Umrechnung für Kristalle der untersuchten Art durchgeführt und erhalten:

$$\begin{aligned}
 s_{11} &= \frac{c_{11}c_{33} - c_{13}^2}{(c_{12} - c_{11})(2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33})} \\
 s_{12} &= \frac{c_{13}^2 - c_{12}c_{33}}{(c_{12} - c_{11})(2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33})} \\
 s_{13} &= \frac{c_{13}}{2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33}} \\
 s_{33} &= \frac{-(c_{11} + c_{12})}{2c_{13}^2 - c_{11}c_{33} - c_{12}c_{33}} \\
 s_{44} &= \frac{\chi_1}{\chi_1 c_{44} - f_{14}^2} \\
 s_{66} &= \frac{\chi_3}{\chi_3 c_{66} - f_{36}^2}
 \end{aligned} \tag{13}$$

Durch sinngemäßes Vertauschen der Konstanten gewinnt man die entsprechenden Gleichungen für die  $c_{ik} = Fu(s, d, \kappa)$ .

Da für unsere Kristalle die  $\chi$  und  $f$  nicht gemessen sind, müssen wir zur Berechnung der  $s_{44}$  und  $s_{66}$  zu den Gleichungen

$$c = \frac{\kappa}{\kappa \cdot s - d^2}$$

greifen, die aussagen, dass

$$\frac{1}{c_{44}} = s_{44} - \frac{d_{14}^2}{\kappa_1}$$

also

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{c_{44}} &= s_{44} - \frac{4\pi \cdot d_{14}^2}{\epsilon_1 - 1} \\
 \frac{1}{c_{66}} &= s_{66} - \frac{4\pi \cdot d_{36}^2}{\epsilon_3 - 1}
 \end{aligned} \tag{14}$$

Damit ist es möglich, bei der Umrechnung der Piezoelektrizität

der Kristalle Rechnung zu tragen. Wir erhalten für die elastischen Moduln des  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  bei  $+20^\circ\text{C}$ :

$$s_{11} = (2,00 \pm 0,20) \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{Dyn}$$

$$s_{33} = (4,57 \pm 0,50) \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{Dyn}$$

$$s_{12} = (0,17 \pm 0,08) \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{Dyn}$$

$$s_{13} = -(1,29 \pm 0,16) \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{Dyn}$$

$$s_{44} = (11,70 \pm 0,35) \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{Dyn}$$

$$s_{66} = (18,50 \pm 0,75) \cdot 10^{-12} \text{ cm}^2/\text{Dyn}$$

Die Genauigkeit der Materialkonstanten wird durch die Umrechnung leider zum Teil erheblich verschlechtert. Bei der Umrechnung wurden folgende  $\varepsilon$ - und  $d$ -Werte zugrunde gelegt<sup>9)</sup>:

$$\varepsilon_1 = 56; \quad d_{14} = 4,5 \cdot 10^{-8} \text{ cgs}$$

$$\varepsilon_3 = 15,3; \quad d_{36} = 138,5 \cdot 10^{-8} \text{ cgs}$$

Bis jetzt liegen keine Messungen an  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  vor, mit Ausnahme derjenigen von H. JAFFE<sup>9)</sup>. Er erhält bei Zimmertemperatur die beiden Moduln

$$s_{44} = 11,6 \cdot 10^{-12} \text{ cgs} \quad \text{und} \quad s_{66} = 16,6 \cdot 10^{-12} \text{ cgs}.$$

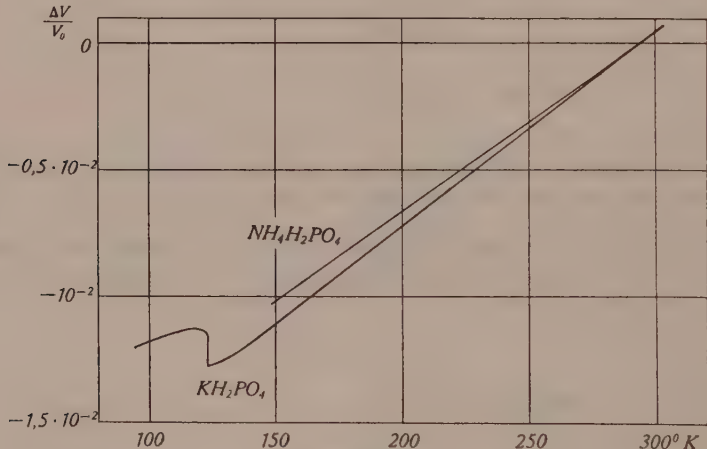


Fig. 7.

Relative Volumenänderung  $\Delta V/V_0$  von  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  und  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ .

Leider gibt der Autor nicht die genaue Art an, wie er sie ermittelt hat. Je nachdem wie gut die Randbedingung  $E = 0$  erfüllt ist, handelt es sich um die genauen  $s$  oder um Werte, die davon abweichen. Der Unterschied könnte maximal  $\frac{4\pi \cdot d^2}{\varepsilon}$  betragen, für  $s_{66}$  also  $0,1 \cdot 10^{-12} \text{ cgs}$ , für  $s_{44}$  ist er nicht von Belang, liegt er doch

mit  $8 \cdot 10^{-18}$  cgs weit unterhalb der Messgenauigkeit. Die Übereinstimmung auf 1% beim  $s_{44}$  muss als sehr gut betrachtet werden. Dagegen ist ein Unterschied von 10% im  $s_{66}$  erstaunlich und scheint nicht durch Messungenauigkeiten erklärt werden zu können. Wir werden später darauf zurückkommen.

Die Volumkompressibilität  $k$

$$k = -\frac{\Delta V/V_0}{\text{Kraft}} = 2 s_{11} + s_{33} + 4 s_{13} + 2 s_{12} = \frac{c_{11} + 2 c_{33} + c_{12} - 4 c_{13}}{c_{11} c_{33} + c_{12} c_{33} - 2 c_{13}^2}$$

wird für  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  bei  $+20^\circ \text{C}$   $(3,75 \pm 0,5) \cdot 10^{-12}$  cgs.

### b) Temperaturverlauf der elastischen Konstanten.

Der Temperaturverlauf der Volumenänderung berechnet aus den von JAFFE<sup>9)</sup> angegebenen linearen Ausdehnungskoeffizienten ( $5 \cdot 10^{-6} \parallel c$  und  $33 \cdot 10^{-6} \perp c$  pro Grad) ist in Fig. 7 eingetragen. Die Dichte wächst also von Zimmertemperatur bis zum Umwand-

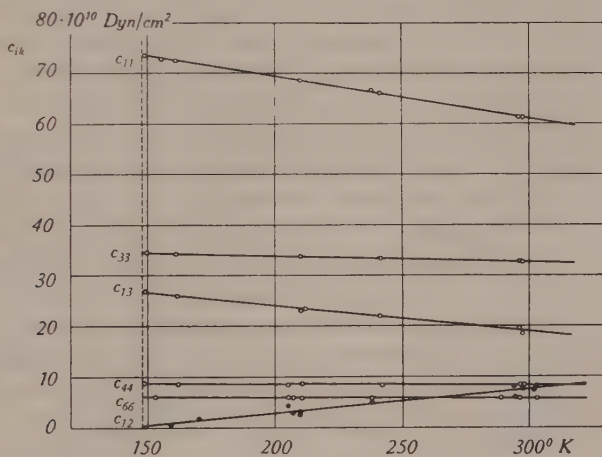


Fig. 8.

$\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ . Temperaturverlauf der Elastizitätskonstanten.

lungspunkt um 1%, was bei der Auswertung der  $c$  berücksichtigt wurde.

Es zeigt sich, dass sich die  $c_{ik}$  im ganzen gemessenen Temperaturbereich völlig normal verhalten (Fig. 8). Es wurde auch speziell darauf geachtet, ob sich der Umwandlungspunkt eventuell durch eine anomale Änderung eines der  $c_{ik}$  bemerkbar macht. Aus diesem Grunde haben wir die Beugungsfigur in einem Bereich von etwa  $20^\circ$  alle  $0,1^\circ$  bis zum Umwandlungspunkt ausgemessen. Am Umwand-



lungspunkt zersplittert der Kristall, vorwiegend in Spaltebenen senkrecht  $a$ , in kleine Stücke und kann deshalb nicht mehr weiter untersucht werden. Die Umwandlungstemperatur schwankt bis zu  $2^\circ$  von Kristall zu Kristall. Wir bestimmten sie zu  $(148,3 \pm 1,0)^\circ \text{K}$ , was gut mit anderen Autoren in Einklang steht.

## 2. $\text{KH}_2\text{PO}_4$ .

### a) Resultate bei $+20^\circ \text{C}$ .

Auch bei  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  wurde die Dichte der untersuchten Kristalle gemessen. Sie beträgt bei  $+16^\circ \text{C}$   $2,328 \text{ g/cm}^3 \pm 0,5^\circ_{00}$ , ist also etwas kleiner als die Angabe in LANDOLT und BÖRNSTEIN mit  $2,338 \text{ g/cm}^3$ .

Während das Beugungsbild bei Lichtdurchgang durch den Kristall parallel  $a$  im wesentlichen gleich aussieht wie dasjenige von  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ , so ist das Beugungsbild senkrecht  $c$  (Licht parallel  $c$ ) wesentlich anders als bei  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ . Aus Fig. 9 ist ersichtlich, dass die Beugungskurven in der Richtung der Winkelhalbierenden der  $a$ -Achsen einen Doppelpunkt haben. Zur Sicherheit haben wir diese Erscheinung an mehreren verschiedenen orientierten Kristallquadranten nachgeprüft. Ein entsprechendes Photogramm, bei dem der Kristall in einer  $a$ -Richtung angeregt und auf Kosten der Lichtintensität mit einer noch kleineren Lichtblende gearbeitet wurde, um die Genauigkeit zu erhöhen, ist in Fig. 9 rechts wiedergegeben.

Aus den Gleichungen (8) zur Bestimmung der  $c_{ik}$  folgt sofort aus diesem Beobachtungsergebnis, dass innerhalb der Genauigkeit von etwa 1%  $c_{66} = -c_{12}$ . Wie man aus der Gleichung der Formfrequenzfläche leicht ableiten kann, folgt daraus, dass die Beugungsfigur in zwei zueinander senkrecht stehende Ellipsen zerfällt, deren Achsen parallel den kristallographischen  $a$ -Achsen liegen, was auch tatsächlich beobachtet wird, wie aus den Photogrammen ersichtlich ist.

Nachstehend die bei  $+20^\circ \text{C}$  ermittelten elastischen Konstanten  $c_{ik}$  von  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ .

$$\begin{aligned} c_{11} &= (69,1 \pm 0,35) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2 \\ c_{33} &= (55,6 \pm 0,30) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2 \\ c_{12} &= -(6,00 \pm 0,06) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2 \\ c_{13} &= (12,2 \pm 1,2) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2 \\ c_{44} &= (12,90 \pm 0,13) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2 \\ c_{66} &= (6,00 \pm 0,03) \cdot 10^{10} \text{ Dyn/cm}^2 \end{aligned}$$

Die relativ kleine Genauigkeit von  $c_{13}$  rührt daher, dass diese Konstante empfindlich ist auf Orientierungsfehler, denn ein Win-

kelfehler von  $5^\circ$  bei der Auswertung verursacht eine Fälschung des  $c_{13}$  um  $15\%$ . Die Genauigkeit wurde grösstenteils dadurch erhöht, dass Beugungspunkte der zweiten, ja sogar dritten Ordnung ausgewertet wurden.

Auch hier lassen sich aus den  $c_{ik}$  die  $s_{ik}$  berechnen, wobei leider wieder die Genauigkeit zufolge der Umrechnung verschlechtert wird. Wir haben jetzt die Möglichkeit, diese Resultate mit den aus Resonanzfrequenzmessungen von Stäben und Platten von BANTLE, MÄHLY, REVERDIN und SCHERRER<sup>4)</sup> ermittelten  $s_{ik}$  zu vergleichen

$s_{ik}$  in  $10^{-12}$  cgs.

$s_{ik}$	berechnet aus opt. gemessenen $c$	Resonanzmethode <sup>4)</sup>	JAFFE <sup>9)</sup>
$s_{11}$	$1,53 \pm 0,05$	$1,516 \pm 0,01$	—
$s_{33}$	$1,96 \pm 0,05$	$1,951 \pm 0,01$	—
$s_{12}$	$0,20 \pm 0,02$	$0,18 \pm 0,06$	—
$s_{13}$	$-0,38 \pm 0,05$	$-0,45 \pm 0,02$	—
$s_{44}$	$7,75 \pm 0,05$	$7,79 \pm 0,03$	$7,77 \pm 0,15$
$s_{66}$	$16,8 \pm 0,04$	$15,81 \pm 0,1$	$16,1 \pm 0,3$

Die Korrekturen zufolge des Piezoeffektes, die bei der Umrechnung (Gleichungen (13) und (14)) bei  $s_{44}$  und  $s_{66}$  auftreten, betragen bei  $s_{44}$   $5 \cdot 10^{-16}$ , fallen also ausser Betracht, und bei  $s_{66}$   $0,2 \cdot 10^{-12}$  cgs, also etwa  $1,4\%$ .

Die Resultate der beiden Methoden stimmen sehr gut miteinander überein, mit Ausnahme von  $s_{66}$ . Bei unserer optischen Methode sind Fehlerquellen herrührend von etwas falscher Orientierung der Kristalle praktisch ausgeschlossen, denn aus Symmetriegründen haben wir zur Bestimmung von  $c_{66}$  einfach die lange Achse der Beugungsellipse zu messen, unabhängig von der äusseren Kristallorientierung. Es sind jetzt in unserem Institut Untersuchungen im Gange, abzuklären ob die beobachtete Diskrepanz bei  $s_{66}$  einer Fehlorientierung bei der Plattenschwingung oder einer Frequenzabhängigkeit dieses abnormal grossen Elastizitätsmoduls zuzuschreiben ist.

Die Kompressibilität  $k$  berechneten wir zu  $(3,9 \pm 0,5) \cdot 10^{-12}$  cgs.

#### b) Temperaturabhängigkeit der Elastizitätskonstanten.

Aus den von DE QUERVAIN<sup>14)</sup> gemessenen Gitterkonstantenänderungen haben wir den Temperaturverlauf der Dichte berechnet (Fig. 7) und bei der Auswertung der  $c_{ik}$  berücksichtigt.

Mit der Methode der Resonanzfrequenzmessung lassen sich zufolge der Anomalie von  $d_{36}^{10}$  die Elastizitätsmoduln nur bis etwa  $10^0$  oberhalb des Curiepunktes mit genügender Genauigkeit bestimmen. Bis  $135^0$  K verlaufen auch nach unseren Messungen die  $c_{ik}$  völlig normal, d. h. sie werden mit sinkender Temperatur langsam grösser. Das Beugungsbild mit Licht parallel  $a$  und damit auch die Konstanten  $c_{11}$ ,  $c_{33}$ ,  $c_{13}$  und  $c_{44}$  bleiben im folgenden bis zur Curietemperatur ( $123^0$  K) völlig normal, bis dann beim Um-

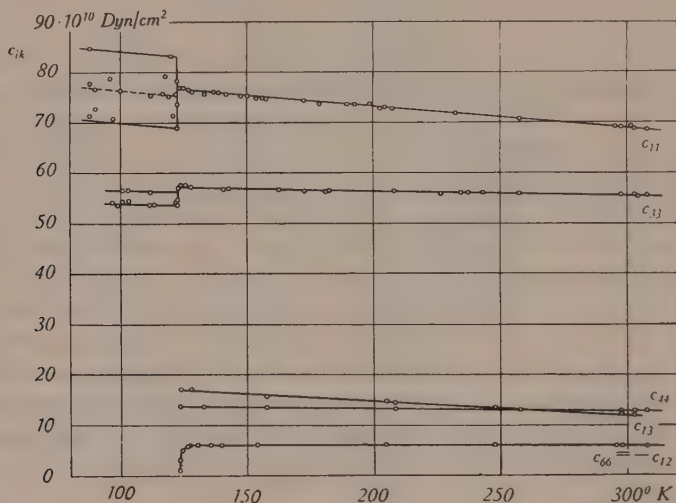


Fig. 10.

$\text{KH}_2\text{PO}_4$ , Temperaturverlauf der Elastizitätskonstanten.

wandlungspunkt bei sinkender Temperatur die Beugung plötzlich verschwindet.

Anders verhält es sich mit dem Beugungsbild, das entsteht beim Lichtdurchgang parallel  $c$ . Während die kleinen Achsen der beiden Ellipsen praktisch konstant bleiben, oder sich kaum merklich weiter verkleinern, beginnt die grosse Achse plötzlich bei  $135^0$  K wieder zu wachsen, zuerst langsam, dann immer rascher, je näher man dem Curiepunkt kommt, bis dann auch in dieser Richtung die Beugung verschwindet und der Kristall zugleich undurchsichtig wird. Die genaue Messung ergibt ein Abfallen des  $c_{66}$  von ca.  $6,35 \cdot 10^{10}$  Dyn/cm<sup>2</sup> auf  $1,15 \cdot 10^{10}$  Dyn/cm<sup>2</sup> (Fig. 11).

Im ganzen beobachteten Temperaturgebiet zerfällt die Beugungsfigur in zwei Ellipsen; es ist also dauernd  $c_{12} = -c_{66}$ . Es handelt sich demnach nicht um ein zufälliges Zusammenfallen bei einer

bestimmten Temperatur, vielmehr scheint diese Beziehung eine spezielle Eigenart des  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ -Gitters zu sein.

Unterhalb der Curietemperatur, wo der Kristall bereichsweise spontan polarisiert ist, konnte trotz allen Bemühungen keine ganze Beugungsfigur mehr beobachtet werden. Bei allen Ultraschallversuchen ist bekanntlich die Homogenität des Materials von grösster Wichtigkeit, da kleinste Risse und eventuelle Gaseinschlüsse den Durchgang von Ultraschall praktisch vollständig verhindern (Werkstoffprüfung). Diese Tatsache ist der Grund, dass unterhalb der Curietemperatur keine Beugung mehr auftritt, da, wie schon früher mitgeteilt<sup>8)11)</sup>, der Kristall allgemein durch viele

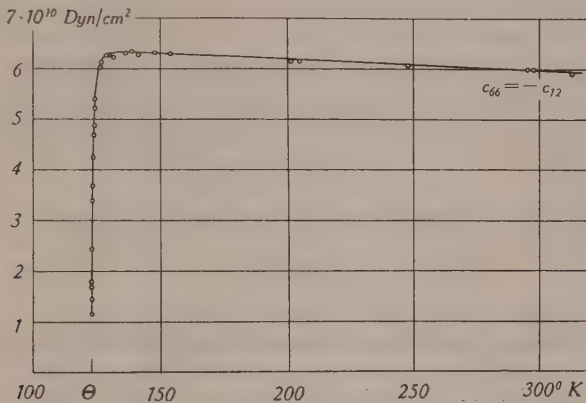


Fig. 11.

$\text{KH}_2\text{PO}_4$ . Temperaturverlauf der Elastizitätskonstanten  $c_{66}$  und  $c_{12}$ .

Risse in kleine Stücke unterteilt ist, die beim Erwärmen über den Curiepunkt wieder zusammenwachsen. Ganz ausnahmsweise konnte in einigen wenigen Richtungen (bei Licht parallel  $a$ ) für kurze Momente das Aufblitzen von zwei Beugungspunkten beobachtet werden, die sofort wieder verschwanden. Die Auswertung dieser Punkte ist natürlich weniger genau. Immerhin sind die diesbezüglichen Messungen in Fig. 10 eingezeichnet. Aus der grossen Streuung der Punkte, besonders bei  $c_{11}$ , scheint es wahrscheinlich, dass auch mechanische Hysteresis auftritt. Beugung, die einer  $c_{44}$ -Schubwelle entsprechen würde, konnte nie beobachtet werden; aus diesem Grunde kann auch  $c_{13}$  (Gleichung (11)) unterhalb des Curiepunktes nicht mehr angegeben werden.

Es wäre interessant, die diesbezüglichen Untersuchungen beim Überschreiten des Curiepunktes an Seignettesalz auszuführen,



was experimentell sicher einfacher wäre, weil dieses Salz keine Risse im Curiegebiet aufweist und zudem bei normalen Temperaturen gemessen werden könnte.

Erwähnt sei noch, dass die Kompressibilität, die sich mit der Temperatur nur unwesentlich ändert, beim Curiepunkt bei sinkender Temperatur innerhalb  $2^\circ$  um ca. 5% abnimmt.

### 3. Diskussion.

Es bleibt uns jetzt noch abzuklären, inwieweit die vereinfachende Annahme (Gleichung (4)), dass bei unseren Messungen die Polarisierung null sei, berechtigt ist. In Wirklichkeit können wir bei unserem isoliert aufgestellten schwingenden piezoelektrischen Kristall weder erreichen, dass die Polarisierung null ist, noch dass das elektrische Feld  $E$  am Kristall verschwindet. Unserer experimentellen Anordnung entspricht die Bedingung, dass die dielektrische Verschiebung  $D$  gleich null ist. Daraus folgt aber sofort

$$E = -4\pi \cdot P.$$

Wir setzen dieses Feld in die Gleichungen (12) ein

$$\begin{aligned} x &= s \cdot X - d \cdot 4\pi \cdot P \\ P &= d \cdot X - \kappa \cdot 4\pi \cdot P. \end{aligned} \quad (15)$$

(Die Indizes sind der Einfachheit halber weggelassen.)

Aus der zweiten Gleichung erhält man sofort unter Verwendung

$$\text{von } \kappa = \frac{\epsilon - 1}{4\pi} \quad P = \frac{d}{\epsilon} \cdot X.$$

Diesen Ausdruck in (15) eingesetzt ergibt

$$x = s \cdot X - \frac{4\pi \cdot d^2}{\epsilon} \cdot X = \left[ (s)_{E=0} - \frac{4\pi \cdot d^2}{\epsilon} \right] \cdot X = (s)_{D=0} \cdot X.$$

Wir messen also z. B.  $(c_{44})_{D=0}$  und erhalten

$$(s_{44})_{D=0} = \frac{1}{(c_{44})_{D=0}}.$$

Wir haben aber früher gesehen, dass für die theoretischen Voigt'schen  $c$  bei  $P = 0$  gilt:

$$(s_{44})_{P=0} = (s_{44})_{E=0} - \frac{4\pi \cdot d_{14}^2}{\epsilon_1 - 1} = \frac{1}{(c_{44})_{P=0}}.$$

Man sieht also, dass wir zu „weich“ messen, d. h. zu kleine  $c$ -Werte haben, weil wir die Polarisierung nicht ganz verhindern.

Wir haben nun den begangenen Fehler auszurechnen. Er tritt übrigens, wie man leicht feststellen kann, nur bei  $c_{44}$  und  $c_{66}$  auf, wegen des einfachen Schemas der piezoelektrischen Konstanten.

$$\Delta s = (s)_{D=0} - (s)_{P=0} = \frac{4\pi \cdot d^2}{\epsilon(\epsilon - 1)}.$$

Für  $\text{HN}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ :  $d_{14} = 4,5 \cdot 10^{-8}$  cgs  $\epsilon_1 = 56$   
 $d_{36} = 138,5 \cdot 10^{-8}$  cgs  $\epsilon_3 = 15,3$   
 $(s_{44})_{D=0} - (s_{44})_{P=0} = 8,2 \cdot 10^{-18}$  cgs  $(0,0008\%_{00} \text{ von } s_{44})$   
 $(s_{66})_{D=0} - (s_{66})_{P=0} = 1,1 \cdot 10^{-13}$  cgs  $(6\%_{00} \text{ von } s_{66})$

Für  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  unter der Annahme  $d_{14} = 4 \cdot 10^{-8}$  cgs  $\epsilon_1 = 42$   
 $d_{36} = 63 \cdot 10^{-8}$  cgs  $\epsilon_3 = 22$

erhalten wir

$$(s_{44})_{D=0} - (s_{44})_{P=0} = 1,2 \cdot 10^{-17} \text{ cgs } (0,0015\%_{00} \text{ von } s_{44})$$

$$(s_{66})_{D=0} - (s_{66})_{P=0} = 1,1 \cdot 10^{-14} \text{ cgs } (0,7\%_{00} \text{ von } s_{66})$$

Soviel die Korrekturen bei Zimmertemperatur. Es bleibt noch abzuschätzen, wie sich diese Korrektur bei  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  verändert beim Herannahen an die Curietemperatur, weil dort  $d_{36}$  und  $\epsilon_3$  extrem hohe Werte annehmen. Zugrundegelegt werden Messungen von BUSCH<sup>12)</sup>, BANTLE und CARLISCH<sup>10)</sup> und anderen Autoren. Am Curiepunkt selbst sind  $\epsilon_3$  und  $d_{36}$  maximal gross und haben die Werte  $d_{36} = 60000 \cdot 10^{-8}$  cgs und  $\epsilon_3 = 48000$ . Damit wird die Korrektur für  $s_{66}$   $1,96 \cdot 10^{-16}$  cgs gegenüber  $1,1 \cdot 10^{-14}$  bei Zimmertemperatur. Zudem fällt ja  $c_{66}$ , d. h.  $s_{66}$  steigt zu sehr hohen Werten an, womit der prozentuale Fehler ohnehin sehr klein wird.

Zusammenfassend kann also gesagt werden, dass mit der durchgeführten Methode innerhalb der Messgenauigkeit die Vorgeschriebenen  $c_{ik}$  gemessen werden. Einzig bei  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ , das in der  $c$ -Richtung eine relativ kleine  $DK$ , aber einen sehr hohen Piezomodul hat, haben wir ein bei sehr genauen Messungen merkliches Abweichen. Die diesbezügliche Korrektur wurde bei allen unseren Werten bereits angebracht.

Was die Diskrepanz bei den mit dem Auftreten der spontanen Polarisation gekoppelten Konstanten  $c_{66}$ , bzw. Moduln  $s_{66}$ , anbetrifft, so vermuten wir, dass sie einer Frequenzabhängigkeit dieser Grösse zuzuschreiben ist. Die Unterschiede im Elastizitätsmodul betragen für  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  11 %, für  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  6,5 %, je nachdem ob er mit etwa  $10^5$  Hz oder wie bei uns mit ca.  $2,5 \cdot 10^7$  Hz gemessen wird. Dass der Kristall bei diesen Frequenzen schon merklich weicher ist, zwingt uns den Schluss auf, dass eine Gittereigenschwingung, in diesem Fall sehr wahrscheinlich die der Hydrogen-

bindung, bei aussergewöhnlich tiefen Frequenzen, weit im langwelligen Ultrarot zu suchen ist und die sich offenbar kurz oberhalb des Curiepunktes zu noch tieferen Frequenzen verschiebt. Es macht sich also bei diesen Frequenzen bereits die Dispersion eines Elastizitätsmoduls bemerkbar.

Interessant ist es, unsere Resultate mit denen MÜLLERS<sup>1)</sup> an Seignettesalz zu vergleichen. Er glaubt mit Sicherheit festgestellt zu haben, dass  $c_{44}$ , das bei diesem Kristall in bezug auf die Seignettelektrizität die analoge Konstante ist wie bei uns das  $c_{66}$ , eine

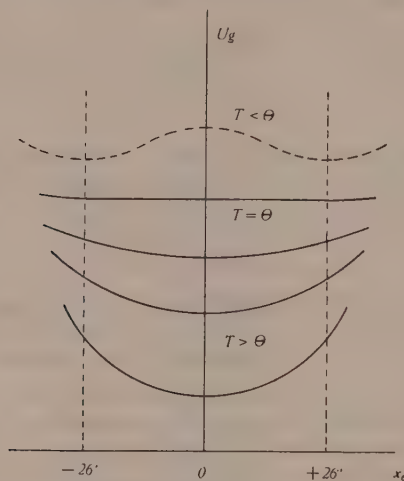


Fig. 12.

Gitterenergie  $U_g$  in willkürlichen Einheiten als Funktion der Schubdeformation  $x_6$  bei verschiedenen Temperaturen.

„wahre“ Konstante des Kristalls sei und als Funktion der Temperatur keine Anomalie mehr aufweise, wie der entsprechende Modul  $s_{44}$ . Mit anderen Worten sei die spontane elastische Deformation am Curiepunkt nicht durch eine elastische Anomalie hervorgerufen, sondern eine sekundäre Erscheinung. Ob auch hier Dispersion, also eine Frequenzabhängigkeit von  $c_{44}$ , auftritt, bleibt noch zu untersuchen. Es scheint wahrscheinlich, dass auf diesem Wege entschieden werden kann, ob der Mechanismus der Seignettelektrizität bei  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  ein grundsätzlich anderer ist als bei Seignettesalz.

Im Gegensatz zu MÜLLERS Resultaten bei Seignettesalz stehen unsere Beobachtungen an  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ . Hier ändert sich, wie wir gesehen haben, nicht nur  $s_{66}$ , sondern auch  $c_{66}$  beim Herannahen an den Curiepunkt wesentlich, und zwar ganz im Sinne einer Theorie

von SLATER<sup>13)</sup>, der auf statistische Art aus den möglichen Anordnungen der Wasserstoffe im Gitter die freie Energie als Funktion des Dipolmomentes für verschiedene Temperaturen berechnet hat. Beim Herannahen an den Curiepunkt  $\theta$  verflacht sich das Minimum, um dann bei  $\theta$  ganz zu verschwinden. Da ja bekanntlich mit dem Auftreten der Polarisation  $P_3$  eindeutig eine Schubdeformation  $x_6$  des Kristalls verbunden ist, können wir analog zu SLATER die Gitterenergie als Funktion dieser Schubdeformation oder Winkeländerung bei verschiedenen Temperaturen auftragen (Fig. 12). Wir finden, dass das Minimum bei Null sich beim Herannahen an  $\theta$  zuerst langsam, dann immer schneller verflacht, entsprechend dem Abfallen von  $c_{66}$ , das ein Mass für die Krümmung darstellt. Unterhalb des Curiepunktes sind die Gleichgewichtslagen bekanntlich bei  $\pm 27'^{14)}$ . Man sieht, dass dann bei Schubdeformationen Hysteresis auftreten wird und  $c_{66}$  nicht mehr eindeutig definiert ist, in unserem Fall von der Schwingungsamplitude abhängen müsste, was leider nicht untersucht werden kann, weil der Kristall undurchsichtig ist und sich zudem nicht mehr zu Schwingungen anregen lässt. Unsere Resultate sind also eine Stütze mehr für SLATERS Theorie, und es wäre zu begrüßen, wenn sie neu aufgegriffen und weiter ausgebaut würde.

Meinem verehrten Lehrer, Herrn Prof. Dr. P. SCHERRER, bin ich für sein stets förderndes Interesse an dieser Arbeit und die vielen wertvollen Diskussionen im Zusammenhang mit diesen Problemen zu grossem Dank verpflichtet.

Physikalisches Institut der ETH., Zürich.

#### Literaturverzeichnis.

- 1) H. MÜLLER, Phys. Rev. **57**, 829 (1940).
- 2) W. P. MASON, Phys. Rev. **55**, 775 (1939).
- 3) W. LÜDY, H. P. A. XV, 527 (1942).
- 4) W. BANTLE, H. MÄHLY, D. REVERDIN und P. SCHERRER, H. P. A. demnächst.
- 5) C. SCHÄFER und L. BERGMANN, Sitz. Ber. Berl. Akad. 1935.
- 6) E. FUES und H. LUDLOFF, ebenda.
- 7) L. BERGMANN, Ultraschall, Berlin 1942.
- 8) B. ZWICKER und P. SCHERRER, H. P. A. XVII, 346 (1944).
- 9) H. JAFFE, Am. Phys. Soc. Meeting NY 1945 (briefliche Mitteilung).
- 10) W. BANTLE und C. CAFLISCH, H. P. A. XVI, 235 (1943).
- 11) M. DE QUERVAIN und B. ZWICKER, H. P. A. XVI, 216 (1943).
- 12) G. BUSCH, H. P. A. XI, 269 (1938).
- 13) J. C. SLATER, Journ. Chem. Physics **9**, 16 (1941).
- 14) M. DE QUERVAIN, H. P. A. XVII, 509 (1944).





# HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XIX

## AUTORENREGISTER — TABLE DES AUTEURS

	Seite
ACKERET, J.: Zur Theorie der Raketen . . . . .	103
ADDARIO, M.: s. Cocconi e Addario . . . . .	430
ALDER, F.: s. Huber, Alder und Baldinger . . . . .	204
ALDER, F.: s. Huber, Alder, Baldinger und Metzger . . . . .	207
BALDINGER, E. (Basel): Eine verbesserte Untersetzerschaltung und ihre Ver- wendung in einem 256fach-Untersetzer, Impulsgeber und Zeitmessgerät . . . . .	202
BALDINGER, E.: s. Huber, Alder und Baldinger . . . . .	204
BALDINGER, E.: s. Huber, Alder, Baldinger und Metzger . . . . .	207
BALDINGER, E., Hälgi, W., Huber, P. und Stebler, A. (Basel): Untersuchungen an einem linearen Verstärker . . . . .	423
BANDERET, P. et Fierz, M. (Bâle): Diffusions d'électrons par un champ coulombien magnétique . . . . .	243
BANDERET, Pierre Paul: Zur Theorie singularer Magnetpole . . . . .	
BERICHT über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft 199 u. . . . .	399
BLATTNER, H., Matthias, B. und Merz, W. (ETH., Zürich): Charakteristische Farbstoffeinlagerungen in seignette-elektrischen Kristallen . . . . .	415
BLEULER, E. und Zünti, W.: Über die Isotope S <sup>37</sup> und P <sup>34</sup> , die bei Bestrah- lung von Chlor mit schnellen Neutronen entstehen . . . . .	137
BLEULER, E. und Zünti, W.: Zur Absorptionsmethode der Bestimmung von $\beta$ - und $\gamma$ -Energien . . . . .	375
BLEULER, E., Bollmann, W. und Zünti, W. (ETH., Zürich): $\beta$ -Zerfall von A <sup>41</sup> . . . . .	419
BLEULER, E., Scherrer, P., Walter, M. und Zünti, W. (ETH., Zürich): $\gamma$ -Strah- lung von N <sup>16</sup> . . . . .	421
BLEULER, E. und Zünti, W. (ETH., Zürich): Zerfallsenergie von O <sup>19</sup> , Na <sup>25</sup> und K <sup>42</sup> . . . . .	421
BOLLMANN, W.: s. Bleuler, Bollmann und Zünti . . . . .	419
BOUVIER, P. B.: s. Stückelberg et Bouvier . . . . .	237
BRADT, H., Gugelot, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P. und Scherrer, P.: Empfindlichkeit von Zählrohren mit Blei-, Messing- und Aluminiumkathode für $\gamma$ -Strahlung im Energieintervall 0,1 MeV bis 3 MeV . . . . .	77
BRADT, H., Gugelot, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R. (ETH., Zürich): Die Silberisomere Ag <sup>*107</sup> und Ag <sup>*109</sup> . . . . .	218
BRADT, H., Gugelot, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R. (ETH., Zürich): Die duale radioaktive Umwandlung des Cu <sup>64</sup> . . . . .	219

BRADT, H., Gugelot, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R. (ETH., Zürich): Umwandlungsschema des $\text{Zn}^{63}$ . . . . .	221
BRADT, H., Gugelot, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R. (ETH., Zürich): K-Einfang des $\text{Fe}^{55}$ . . . . .	222
BRADT, H. und Scherrer, P.: Die 93 kV- $\gamma$ -Linie des $\text{UX}_1$ . . . . .	307
BRADT, H., Halter, J., Heine, H. G. und Scherrer, P.: Die Paaremission des $\text{ThC}''$ . . . . .	431
BUSCH, G.: Die elektrische Leitfähigkeit des Siliziumkarbids . . . . .	167
BUSCH, G.: Zusammenhang zwischen der Mengenkonstanten A und der thermischen Aktivierungsenergie $\varepsilon$ im Leitfähigkeitsgesetz der Störhalbleiter . . . . .	189
BUSCH, G. und Labhart, H. (ETH., Zürich): Halleffekt im Siliciumkarbid . . . . .	230
BUSCH, G. und Labhart, H. (ETH., Zürich): Entartung des Elektronengases im Siliciumkarbid . . . . .	417
BUSCH, G. und Labhart, H.: Über den Mechanismus der elektrischen Leitfähigkeit des Siliciumkarbids . . . . .	463
COCCONI, G. e Addario, M. (Istituto di Fisica dell'Università Catania): Sulla presenza nella radiazione cosmica al livello del mare di particelle non elettroniche lente . . . . .	430
DÄLLENBACH, Walter (Zürich): Beobachtungen über Materialtransport in Gasentladungen. Ein Beitrag zum Problem der Rückzündung . . . . .	202
DREYFUS-GRAF, J. (Genève): De la théorie ellipsoïdale des liaisons ondulatoires . . . . .	399
DREYFUS-GRAF, J. (Genève): Sur les spectres transitoires d'éléments phonétiques . . . . .	404
FICHTER, R.: Ultrarotabsorption von Aluminiumoxydschichten . . . . .	21
FIERZ, M.: s. Banderet et Fierz . . . . .	243
FREY, Paul: Beiträge zur Wirkungsweise des Funkenzählers . . . . .	41
GIBERT, A. et Rossel, J.: Effet de la température sur la diffusion neutron-proton . . . . .	285
GIBERT, A., Keller, R. et Rossel, J.: Influence des liaisons moléculaires dans la diffusion des neutrons thermiques par l'azote . . . . .	493
GOLDSCHMIDT, R. (Cossonay-Gare): Temperaturabhängigkeit der ferromagnetischen Eigenschaften bei schwachen Feldern und Curiepunkt . . . . .	415
GUGELOT, P. C.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Scherrer . . . . .	77
GUGELOT, P. C.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen . . . . .	218, 219, 221 und 222
GUGELOT, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R. (ETH., Zürich): Zum radioaktiven Zerfall des Elementes 43 . . . . .	418
GUGELOT, P. C., Huber, O., Medicus, H., Preiswerk, P., Scherrer, P. und Steffen, R. (ETH., Zürich): Harte Gammastrahlung bei der Positronenannihilation . . . . .	418
HÄELG, W.: s. Baldinger, Hälg, Huber und Stebler . . . . .	423
HALTER, J.: s. Bradt, Halter, Heine und Scherrer . . . . .	431
HEILPERN, Walter: Die Absorption des Lichtes durch Sauerstoff im Wellenlängenbereich $\lambda = 2100$ bis $\lambda = 2400$ ÅE in Abhängigkeit vom Druck . . . . .	245
HEINE, H. G.: s. Bradt, Halter, Heine und Scherrer . . . . .	431

HIRZEL, O. und Wäffler, H. (ETH. Zürich): Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons an Cadmium: $\text{Cd}^{111} (\gamma, p) \text{Ag}^{110}$ . . . . .	214
HIRZEL, O. und Wäffler, H. (ETH., Zürich): Über die beim Zerfall des $\text{K}^{40}$ emittierte $\gamma$ -Strahlung . . . . .	216
HIRZEL, O. und Wäffler, H. (ETH., Zürich): Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons . . . . .	425
HUBER, O.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Scherrer . .	77
HUBER, O.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen . . . . .	218, 219, 221 und 222
HUBER, O.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen .	418
HUBER, P. und Metzger, F. (Basel): Untersuchungen an einer Ionenquelle von 60 kV Betriebsspannung . . . . .	200
HUBER, P., Alder, F. und Baldinger, E. (Basel): Eine Methode zur Messung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches mit schnellen Zählrohren . . . . .	204
HUBER, P., Alder, F., Baldinger, E. und Metzger, F. (Basel): Über die Impulsform im schnellen Zählrohr . . . . .	207
HUBER, P.: s. Baldinger, Hälgl, Huber und Stebler . . . . .	423
JAQUEROD, A. (Neuchâtel): A propos de la loi de Hooke . . . . .	224
JOST, Res: Zur Ladungsabhängigkeit der Kernkräfte in der Vektormesonentheorie ohne neutrale Mesonen . . . . .	113
INDUNI, G. (Zürich): Eine neue Methode der Elektronenbeugung . . . . .	231
KELLER, R.: s. Gibert, Keller et Rossel . . . . .	493
LABHART, H.: s. Busch und Labhart . . . . .	230, 417 und 463
LAMBOSSY, P.: Sur la phase variable de fermeture de l'écoulement d'un liquide visqueux dans un tube horizontal raccordé à un réservoir . . .	266
LOTMAR, W.: Die Kristallitgrösse dünner Antimonschichten . . . . .	234
LÜDI, F. (Brown, Boveri & Cie., Baden): Zur Theorie des Magnetfeldgenerators für Mikrowellen . . . . .	3
LÜDI, F. (Brown, Boveri & Cie., Baden): Über den Schroteffekt und die Empfangsempfindlichkeit von Laufzeitröhren verschiedener Typen . .	355
MÄHLY, H. (ETH., Zürich): Längsschwingungen dicker Stäbe . . . . .	412
MATTHIAS, B. und Merz, W. (ETH., Zürich): Einfluss von Fremdionen auf seignetteelektrische Eigenschaften . . . . .	227
MATTHIAS, B. und Merz, W. (ETH. Zürich): Piezoelektrizität der Zucker-Natriumhalogenide . . . . .	229
MATTHIAS, B.: s. Blattner, Matthias und Merz . . . . .	415
MEDICUS, H.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Scherrer .	77
MEDICUS, H.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen . . . . .	218, 219, 221 und 222
MEDICUS, H.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	418
MERZ, W.: s. Matthias und Merz . . . . .	227 und 229
MERZ, W.: s. Blattner, Matthias und Merz . . . . .	415
METZGER, F.: s. Huber und Metzger . . . . .	200
METZGER, F.: s. Huber, Alder, Baldinger und Metzger . . . . .	207
MEYER, K. P. (Universität Zürich): Der Multiplier als Zähler für Elementarpartikel . . . . .	211



PATRY, J. (Albiswerk-Zürich-A.G.): Sur la théorie des antennes de radio- Comparaison avec l'expérience . . . . .	244
PAULI, W. (ETH. Zürich): Diracs Feldquantisierung und Emission von Pho- tonen kleiner Frequenz . . . . .	234
PERRIER, Albert (Lausanne): Elasticité et ferromagnétisme inapparent . .	226
PERRIER, Albert (Lausanne): Sur la détermination et la mesure de magnéto- galvanisme transversal . . . . .	410
PREISWERK, P.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Scherrer	77
PREISWERK, P.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen . . . . .	218, 219, 221 und 222
PREISWERK, P.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	418
RIVIER, D.: s. Stückelberg et Rivier . . . . .	240
ROSSEL, J.: s. Gibert et Rossel . . . . .	307
ROSSEL, J. (ETH. Zürich): Etude des forces intermoléculaires par siffusion des neutrons thermiques . . . . .	421
ROSSEL, J.: s. Gibert, Keller et Rossel . . . . .	493
SCHERRER, P.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk und Scherrer	77
SCHERRER, P.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen . . . . .	218, 219, 221 und 222
SCHERRER, P.: s. Bradt und Scherrer . . . . .	307
SCHERRER, P. s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	418
SCHERRER, P.: s. Bleuler, Scherrer, Walter und Zünti . . . . .	421
SCHERRER, P.: s. Bradt, Halter, Heine und Scherrer . . . . .	431
STEBLER, A.: s. Baldinger, Hälgl, Huber und Stebler . . . . .	423
STEFFEN, R.: s. Bradt, Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen . . . . .	218, 219, 221 und 222
STEFFEN, R.: s. Gugelot, Huber, Medicus, Preiswerk, Scherrer und Steffen	418
STUECKELBERG, E. C. G. et Bouvier, P. B.: Rayonnement d'accélération d'un électron dans l'effet Compton . . . . .	237
STUECKELBERG, E. C. G. et Rivier, D.: Opérateurs non linéaires en theorie des quanta . . . . .	240
STUECKELBERG, E. C. G.: Une propriété de l'opérateur $S$ en mécanique asymp- totique . . . . .	242
TSCHUDIN, Kurt: Die Verdampfungsgeschwindigkeit von Eis . . . . .	91
VILLARS, Felix: Ein Beitrag zum Deuteronen-Problem . . . . .	323
WÄFFLER, H.: s. Hirzel und Wäffler . . . . .	214, 216 und 425
WALTER, M.: s. Bleuler, Scherrer, Walter und Zünti . . . . .	421
WIELAND, K. (Zürich): Absorptionsspektren zweiatomiger Radikale im thermischen Gleichgewicht . . . . .	408
WOLFKE, M. (Technische Hochschule Warszawa): Über die Mehrfachquanten in der Planckschen Strahlung . . . . .	427
ZÜNTI, W.: s. Bleuler und Zünti . . . . .	137, 375 und 421
ZÜNTI, W.: s. Bleuler, Bollmann und Zünti . . . . .	419
ZÜNTI, W.: s. Bleuler, Scherrer, Walter und Zünti . . . . .	421
ZWICKER, B.: Elastische Untersuchungen an $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ und $\text{KH}_2\text{PO}_4$ . . .	523

# HELVETICA PHYSICA ACTA

VOLUMEN XIX

## INHALTSVERZEICHNIS — TABLE DES MATIÈRES

	Seite
<i>Fasciculus I</i>	
(20. II. 1946)	
F. LÜDI: Zur Theorie des Magnetfeldgenerators für Mikrowellen. . . . .	3
R. FICHTER: Ultrarotabsorption von Aluminiumoxydschichten . . . . .	21
<i>Fasciculus II</i>	
(8. IV. 1946)	
PAUL FREY: Beiträge zur Wirkungsweise des Funkenzählers . . . . .	41
H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK und P. SCHERRER: Empfindlichkeit von Zählrohren mit Blei-, Messing- und Aluminiumkathode für $\gamma$ -Strahlung im Energieintervall 0,1 MeV bis 3 MeV . . . . .	77
KURT TSCHUDIN: Die Verdampfungsgeschwindigkeit von Eis . . . . .	91
J. ACKERET: Zur Theorie der Raketen . . . . .	103
ERRATUM F. LÜDI: Zur Theorie des Magnetfeldgenerators für Mikrowellen.	112
<i>Fasciculus III</i>	
(31. V. 1946)	
RES JOST: Zur Ladungsabhängigkeit der Kernkräfte in der Vektormeson- theorie ohne neutrale Mesonen . . . . .	113
E. BLEULER und W. ZÜNTI: Über die Isotope $S^{37}$ und $P^{34}$ , die bei Bestrahlung von Chlor mit schnellen Neutronen entstehen . . . . .	137
G. BUSCH: Die elektrische Leitfähigkeit des Siliziumkarbids . . . . .	167
G. BUSCH: Zusammenhang zwischen der Mengenkonstanten $A$ und der ther- mischen Aktivierungsenergie $l$ im Leitfähigkeitsgesetz der Störhalbleiter	189
<i>Fasciculus IV</i>	
(31. VII. 1946)	
Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft . .	199
P. HUBER und F. METZGER (Basel): Untersuchungen an einer Ionenquelle von 60 kV Betriebsspannung . . . . .	200
WALTER DÄLLENBACH (Zürich): Beobachtungen über Materialtransport in Gasentladungen. Ein Beitrag zum Problem der Rückzündung . .	202

	Seite
E. BALDINGER (Basel): Eine verbesserte Untersetzerschaltung und ihre Verwendung in einem 256fach-Untersetzer, Impulsgeber und Zeitmessgerät . . . . .	202
P. HUBER, F. ALDER und E. BALDINGER (Basel): Eine Methode zur Messung der Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches im schnellen Zählrohr . . . . .	204
P. HUBER, F. ALDER, E. BALDINGER und F. METZGER (Basel: Über die Impulsform im schnellen Zählrohr . . . . .	207
K. P. MEYER (Universität Zürich): Der Multiplier als Zähler für Elementarpartikel . . . . .	211
O. HIRZEL und H. WÄFFLER (ETH. Zürich): Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons an Cadmium: $\text{Cd}^{111} (\gamma, p) \text{Ag}^{110}$ . . . . .	214
O. HIRZEL und H. WÄFFLER (ETH. Zürich): Über die beim Zerfall des $\text{K}^{40}$ emittierte $\gamma$ -Strahlung . . . . .	216
H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH. Zürich): Die Silberisomere $\text{Ag}^{*107}$ und $\text{Ag}^{*109}$ . . . . .	218
H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH. Zürich): Die duale radioaktive Umwandlung des $\text{Cu}^{64}$ . . . . .	219
H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH. Zürich): Umwandlungsschema des $\text{Zn}^{63}$ . . . . .	221
H. BRADT, P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH. Zürich): K-Einfang des $\text{Fe}^{55}$ . . . . .	222
A. JAQUEROD (Neuchâtel): A propos de la loi de Hooke . . . . .	224
ALBERT PERRIER (Lausanne): Elasticité et ferromagnétisme inapparent . . . . .	226
B. MATTHIAS und W. MERZ (ETH. Zürich): Einfluss von Fremdionen auf seignette-elektrische Eigenschaften. . . . .	227
B. MATTHIAS und W. MERZ (ETH. Zürich): Piezoelektrizität der Zucker-Natriumhalogenide . . . . .	229
G. BUSCH und H. LABHART (ETH. Zürich): Halleffekt im Siliziumkarbid . . . . .	230
G. INDUNI (Zürich): Eine neue Methode der Elektronenbeugung . . . . .	231
W. LOTMAR: Die Kristallgrösse dünner Antimonschichten . . . . .	234
W. PAULI (ETH. Zürich): Diracs Feldquantisierung und Emission von Photonen kleiner Frequenz . . . . .	234
E. C. G. STUECKELBERG et P. B. BOUVIER: Rayonnement d'accélération d'un électron dans l'effet Compton . . . . .	237
E. C. G. STUECKELBERG et D. RIVIER: Opérateurs non linéaires en théorie des quanta . . . . .	240
E. C. G. STUECKELBERG: Une propriété de l'opérateur $S$ en mécanique asymptotique . . . . .	242
P. BANDERET et M. FIERZ (Bâle): Diffusion d'électrons par un champ coulombien magnétique . . . . .	243
J. PATRY (Albiswerk-Zürich-A. G.): Sur la théorie des antennes de radio — Comparaison avec l'expérience . . . . .	244



WALTER HEILFERN: Die Absorption des Lichtes durch Sauerstoff im Wellenlängenbereich $\lambda$ 2100 bis $\sigma = 2406$ ÅE in Abhängigkeit vom Druck . .	245
P. LAMBOSSY: Sur la phase de fermeture de l'écoulement d'un liquide visqueux dans un tube horizontal raccordé à un réservoir . . . . .	266
A. GIBERT et J. ROSSEL: Effet de la température sur la diffusion neutron-proton	285

*Fasciculus V*

(21. IX. 1946)

H. BRADT und P. SCHERRER: Die 93 kV- $\gamma$ -Linie des $UX_1$ . . . . .	307
FELIX VILLARS: Ein Beitrag zum Deuteronproblem . . . . .	323
F. LÜDI: Über den Schroteffekt und die Empfangsempfindlichkeit von Laufzeitröhren verschiedener Typen . . . . .	355
E. BLEULER und W. ZÜNTI: Zur Absorptionsmethode der Bestimmung von $\beta$ - und $\gamma$ -Energien . . . . .	375

*Fasciculus VI/VII*

(21. XII. 1946)

Bericht über die Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft . .	399
J. DREYFUS-GRAF (Genève): De la théorie ellipsoïdale des liaisons ondulatoires. . . . .	399
J. DREYFUS-GRAF (Genève): Sur les spectres transitoires d'éléments photonétiques . . . . .	404
K. WIELAND (Zürich): Absorptionsspektren zweiatomiger Radikale im thermischen Gleichgewicht . . . . .	408
ALBERT PERRIER (Lausanne): Sur la détermination et la mesure du magnétogalvanisme transversal . . . . .	410
H. MÄHLI (ETH., Zürich): Längsschwingungen dicker Stäbe . . . . .	412
G. HERZOG (Houston, Texas): Bericht über ein hochempfindliches Zählrohr für $\gamma$ -Strahlen und dessen technische Anwendungen . . . . .	414
R. GOLDSCHMIDT (Cossonay-Gare): Temperaturabhängigkeit der ferromagnetischen Eigenschaften bei schwachen Feldern und Curiepunkt	415
H. BLATTNER, B. MATTHIAS und W. MERZ (ETH. Zürich): Charakteristische Farbstoffeinlagerungen in seignetteelektrischen Kristallen	415
G. BUSCH und H. LABHART (ETH. Zürich): Entartung des Elektronengases im Siliziumkarbid . . . . .	417
F. ZWICKY (Pasadena, Kalifornien): Raketen als Träger wissenschaftlicher Versuchsausrüstungen . . . . .	418
P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH. Zürich): Zum radioaktiven Zerfall des Elements 43 . . . . .	418
P. C. GUGELOT, O. HUBER, H. MEDICUS, P. PREISWERK, P. SCHERRER und R. STEFFEN (ETH. Zürich): Harte Gammastrahlung bei der Positronenannihilation . . . . .	418
E. BLEULER, W. BOLLMANN und W. ZÜNTI (ETH. Zürich): $\beta$ -Zerfall von $A^{41}$ . . . . .	419



	Seite
E. BLEULER, P. SCHERRER, M. WALTER und W. ZÜNTI (ETH. Zürich): $\gamma$ -Strahlung von $N^{16}$ . . . . .	421
E. BLEULER und W. ZÜNTI (ETH. Zürich): Zerfallsenergie von $O^{19}$ , $Na^{25}$ und $K^{42}$ . . . . .	421
J. ROSSEL (ETH. Zürich): Etude des forces intermoléculaires par diffusion des neutrons thermiques . . . . .	421
E. BALDINGER, W. HÄLG, P. HUBER und A. STEBLER (Basel): Untersu- chungen an einem linearen Verstärker . . . . .	423
F. ALDER und P. HUBER (Basel): Die Ausbreitungsgeschwindigkeit des Ionenschlauches in schnellen Zählrohren in Abhängigkeit von Druck und Spannung . . . . .	425
O. HIRZEL und H. WÄFFLER (ETH. Zürich): Kernphotoeffekt unter Emission eines Protons . . . . .	425
M. WOLKE (Techn. Hochschule Warszawa): Über die Mehrfachquanten in der Planckschen Strahlung . . . . .	427
G. COCCONI e M. ADDARIO (Istituto di Fisica dell'Università, Catania): Sulla presenza nella radiazione cosmica al livello del mare di parti- celle non elettroniche lente . . . . .	430
H. BRADT, J. HALTER, H. G. HEINE und P. SCHERRER: Die Paaremission des $ThC''$ . . . . .	431
G. BUSCH und H. LABHART: Über den Mechanismus der elektrischen Leit- fähigkeit des Siliziumkarbids . . . . .	463
A. GIBERT, R. KELLER et J. ROSSEL: Influence des liaisons moléculaires dans la diffusion des neutrons thermiques par l'azote . . . . .	493
PIERRE PAUL BANDERET: Zur Theorie singulärer Magnetpole . . . . .	503
B. ZWICKER: Elastische Untersuchungen an $NH_4H_2PO_4$ und $KH_2PO_4$ . . . .	523
AUTORENREGISTER. . . . .	551
INHALTSVERZEICHNIS. . . . .	555